

INSTYTUT FIZYKI JĄDROWEJ
im. Henryka Niewodniczańskiego
ul. Radzikowskiego 152, 31-342 Kraków, Poland.

www.ifj.edu.pl/reports/2003.html
Kraków, kwiecień 2003

Raport Nr 1921/B

**SPEKTROMETRIA JĄDROWA W BADANIU
BIODOSTĘPNOŚCI RADIONUKLIDÓW
Z „GORĄCYCH CZĄSTEK TYPU PALIWOWEGO”
W ŚRODOWISKU LEŚNYM**

Jerzy Wojciech Mietelski

„I sometimes think that God in creating man somewhat overestimated His ability”

Oscar Wilde

Spis treści

Słowo wstępne	5
Rozdział I. Geneza i właściwości pierwiastków transuranowych oraz ^{90}Sr w środowisku przyrodniczym	
I.1. „Gorące cząstki” i opad czarnobylski	7
I.2. Pluton	9
I.2.1. Właściwości fizykochemiczne plutonu	9
I.2.2. Pluton na Ziemi	10
I.2.3. Toksyczność i radiotoksyczność plutonu	13
I.2.4. Pluton w Polsce	14
I.3. Ameryk i cięższe transuranowce	14
I.4. Właściwości fizykochemiczne ^{90}Sr	18
I.5. Przenikanie w środowisku substancji radioaktywnych do organizmów żywych	19
I.5.1. Współczynniki przenikania i koncentracji	19
I.5.2. Rola mikroorganizmów	20
I.5.3. Modele przenikania	21
Rozdział II. Wybrane spektrometryczne metody pomiarowe stosowane w badaniach radioaktywności środowiska	
II.1. Spektrometria i promieniowanie przenikliwe	22
II.2. Spektrometria promieniowania alfa	22
II.2.1. Promieniowanie alfa	22
II.2.2. Metody radiochemiczne	23
II.2.3. Otrzymywanie źródeł	24
II.2.4. Aparatura pomiarowa	24
II.2.5. Widma promieniowania alfa	26
II.2.6. Obliczenia aktywności	27
II.3. Spektrometria promieniowania beta	29
II.3.1. Promieniowanie beta	29
II.3.2. Pomiar z wykorzystaniem ciekłych scyntylatorów	30
II.3.3. Widma promieniowania beta	31
II.3.4. Metody radiochemiczne	32
II.3.5. Obliczanie aktywności	33
II.3.6. Metoda niestandardowa – efekt Czereenkowa	34
II.4. Spektrometria promieniowania gamma	34
II.4.1. Promieniowanie gamma	34
II.4.2. Budowa spektrometru promieniowania gamma	35
II.4.3. Obliczanie aktywności	42
II.4.4. Efekty aparaturowe	44
II.4.5. Metoda niestandardowa – promieniowanie hamowania	44
II.5. Spektrometria masowa	47
Rozdział III. Badania własne	
III.1. Rekonstrukcji opadu Pu, Am, Cm... w skali całego kraju – próbki z 1991 r..	49
III.1.1. Alfa-promieniotwórcze izotopu plutonu	51
III.1.2. Ameryk, kiur i pierwiastki ziem rzadkich	55
III.1.3. ^{241}Pu w ściółce leśnej	60
III.1.4. Stosunki masowe izotopów Pu	70
III.1.5. Próba rekonstrukcji czarnobylskiego opadu ^{90}Sr	74

<i>III.2. Badania prowadzone w Puszczy Augustowskiej 1996-99</i>	77
<i>III.2.1. Pomiar próbek porostów</i>	77
<i>III.2.2. Pomiar aktywności ściółek z Puszczy Augustowskiej pobranych w 1999</i>	81
<i>III.2.3. Wymywalność radionuklidów ze ściółek leśnych</i>	87
<i>III.3.3. Próbki ściółek z roku 2001</i>	91
III.3. Badania biodostępności Pu, Am i ⁹⁰ Sr	95
<i>III.3.1. Dzikie zwierzęta roślinożerne</i>	95
<i>III.3.2. Ssaki owadożerne i gryzonie</i>	105
<i>III.3.3. Alfa-emiter w grzybach kapeluszowych</i>	108
<i>III.3.4. Izotopy z „gorących cząstek” w próbkach roślin naczyniowych</i>	114
<i>III.3.5. Przenikanie radionuklidów do owadów</i>	119
III.4. Interpretacja dozymetryczna	127
Podsumowanie i wnioski	129
Podziękowania	131
Literatura	132
Aneks 1. Programy analiz widm promieniowania gamma (P.I.M.P) i alfa (ALF)	143
Aneks 2. Stosowane procedury radiochemiczne	145
Objaśnienia skrótów i symboli używanych w pracy	152

Słowo wstępne

Głównym celem omawianych w pracy badań, prowadzonych w latach 1994-2003, było możliwie szerokie rozpoznanie zróżnicowania depozycji i skali włączenia w obieg mikroelementów wybranych składników opadu czarnobylskiego, związanych z drobno zdyspergowanym paliwem jądrowym, zwanym „gorącymi cząstkami typu paliwowego”. Najbardziej charakterystycznymi radionuklidami dla tej frakcji opadu były izotopy plutonu i inne transuranowce takie jak izotopy kiuru i ameryku [Broda i inni, 1989] oraz ^{90}Sr . Uwaga autora koncentrowała się głównie, choć nie wyłącznie, na tych radionuklidach. Początkowo, w latach 1994-1997 prace dotyczyły próby rekonstrukcji depozycji na terenie Polski izotopów: ^{238}Pu , ^{239}Pu , ^{240}Pu , ^{241}Pu , ^{241}Am i ^{90}Sr . Badania te były naturalną kontynuacją i uzupełnieniem wcześniejszych prac nad zróżnicowaniem opadu czarnobylskiego pierwiastków gamma-promieniotwórczych, przedstawionych w pracy doktorskiej autora [Mietelski, 1994]. Poznanie zróżnicowania geograficznego opadu stanowiło etap przygotowawczy dla zasadniczych, późniejszych badań prowadzonych w latach 1997-2002. Dotyczyły one przenikania wymienionych radionuklidów do różnych elementów ekosystemu w środowisku leśnym.

Po kilkunastu latach od wystąpienia opadu czarnobylskiego, przebywające w środowisku „gorące cząstki” mogły ulec częściowemu lub całkowitemu rozpuszczeniu. Istniało uzasadnione przypuszczenie, że zawarte w nich radionuklidy mogły przedostawać się do różnych elementów środowiska. Przez tytułową „biodostępność” rozumie się właśnie zdolność badanych radionuklidów do przenikania do organizmów żywych.

Izotopy plutonu, ^{241}Am i ^{90}Sr znajdowały się w środowisku już przed katastrofą czarnobylską, jako pozostałość globalnego opadu promieniotwórczego po atmosferycznych testach broni jądrowej. Rozróżnienie frakcji czarnobylskiej i globalnego opadu stanowiło nieodzowną część badań.

Przedstawione w pracy badania prowadzono w Laboratorium Badań Skażeń Radioaktywnych Środowiska (LBSRŚ) Zakładu Fizykochemii Jądrowej IFJ w ramach działalności statutowej i dwóch projektów badawczych KBN kierowanych przez autora: „Izotopy plutonu, ameryku, strontu, europu i kiuru w kościach dzikich roślinożernych zwierząt” (nr. 6P04G 09014, realizowany w latach 1998-2000, oceniony przez KBN na „bardzo dobrze”) oraz „Bioindykacja skażeń radioaktywnych, głównie: ^{90}Sr , ^{241}Am oraz izotopami plutonu, z wykorzystaniem owadów i roślin oraz innych elementów ekosystemów semi-naturalnych ” (nr. 6P04G 07520, realizowany w latach 2001-2003, jeszcze nie oceniony). Omawiane wyniki były w większości przedmiotem publikacji, wymienionych w niniejszej pracy wśród pozycji literaturowych.

Interdyscyplinarność prowadzonych badań wymagała współpracy głównie z biologami i leśnikami z Akademii Rolniczej w Krakowie. Dzięki temu uzyskiwano próbki właściwie pobrane oraz określone zgodnie z aktualną terminologią stosowaną w naukach leśnych, a w przypadku organizmów żywych poprawnie oznaczone gatunkowo. Współpracowano również z innymi zespołami badającymi radioaktywność środowiska, głównie z Zakładem Biofizyki Akademii Medycznej w Białymstoku. Pomiary, których realizacja nie była w danym momencie możliwa w IFJ wykonano we współpracy w innymi ośrodkami: Uniwersytetem Północnej Arizony w Flagstaff (USA), Instytutem Fizyki US w Katowicach oraz Instytutem Technik Jądrowych Politechniki Budapeszteńskiej. Z ostatnim z wymienionych ośrodków współpracowano też w zakresie rozwoju stosowanych metod radiochemicznych. Zasadniczo posługiwano się metodami radiochemicznymi opracowanymi w Laboratorium Międzynarodowej Agencji Energii Atomowej (IAEA) w Seibersdorfie (Austria), gdzie autor odbył staż naukowy w 1991 roku.

W pierwszej części pracy przedstawiono w zarysie zagadnienia związane z depozycją „gorących cząstek”, scharakteryzowano podstawowe własności plutonu, ameryku i ^{90}Sr oraz omówione elementy radioekologii. W drugiej części zaprezentowano instrumentalne techniki pomiarowe współczesnej, wysokorozdzielczej stosowanej spektrometrii jądrowej: półprzewodnikową spektrometrię promieniowania alfa, spektrometrię promieniowania beta wykorzystującą ciekłe scyntylatory oraz półprzewodnikową spektrometrię promieniowania gamma. Zaprezentowano spektrometr promieniowania gamma z osłoną czynną skonstruowany w IFJ przy współudziale autora. Oprócz

typowych metod przedstawiono metody uzupełniające wykorzystujące takie zjawiska jak efekt Czerenkowa lub promieniowanie hamowania (*bremsstrahlung*). Zaprezentowano również w zarysie spektrometrię masową i jej zastosowanie w badaniach radioekologicznych oraz zasygnalizowano wzrastające znaczenie w badaniach środowiska tej techniki. Omówienie to w założeniu miało wykraczać ponad niezbędne, z punktu widzenia metodologicznego, przedstawienie zastosowanych w później omawianych badaniach metod pomiarowych. Intencją autora było ich szersze zaprezentowanie metod jądrowych w aspekcie ich zastosowań do badań środowiskowych, na przykładzie rozwiązań przyjętych w LBSRS (IFJ). Poszerzonego omówienia tych metod dokonano z myślą o dydaktycznym przesłaniu niniejszej pracy, dla uzupełnienia dostępnej już na rynku wydawniczym literatury przedmiotu [Hrynkiewicz i Rokita, 1999].

W trzeciej, najobszerniejszej części pracy przedstawiono wyniki badań własnych prowadzonych głównie w ramach wspomnianych powyżej projektów badawczych.

Z myślą o walorach dydaktycznych pracy przygotowano uzupełniający ją dwuczęściowy Aneks. Zaprezentowano w nim opis opracowanych przez autora programów komputerowych służących do analiz widm promieniowania gamma (PIMP) i alfa (ALF) oraz szczegółowo przedstawiono zastosowane metody radiochemicznego oczyszczania, wydzielania i zateżania poszukiwanych radionuklidów.

Dla uproszczenia terminologii w całej pracy przez aktywność rozumie się stężenie aktywności (lub jako synonim: zawartość) wyrażone w Bq/kg suchej masy (s.m.), z wyjątkiem miejsc, gdzie wyraźnie określono to w inny sposób.

Przedmiot pracy dotyczy skutków pewnych działań rodzaju ludzkiego, stąd motto....

I. Geneza i własności pierwiastków transuranowych oraz ^{90}Sr w środowisku przyrodniczym

I.1. „Gorące cząstki” i opad czarnobylski.

Na przełomie kwietnia i maja 1986 roku najbardziej znaczące obłoki radioaktywne nadciągające nad Polskę po wybuchu i w trakcie pożaru IV bloku reaktora RBMK 1000 w Elektrowni Jądrowej im. Lenina w Czarnobylu przechodziły nad terenem Polski w ciągu trzech dni. Pochodziły one z emisji trwającej praktycznie tylko jedną - pierwszą dobę, 26.04.1986. Oficjalnie przyjęto, że przejście zasadniczej części skażonego powietrza rozpoczęło się na terenach wschodnich koło północy z 27/28 kwietnia 1986 r. [PAA, 1991]. Opuściło ono praktycznie teren Polski 1 maja 1986. Po tej dacie napływały jeszcze fale skażonego powietrza, jednak docierały one nad teren Polski po różnych okružnych drogach a nie bezpośrednio, ty samym ulegały znacznemu rozproszeniu i rozcieńczeniu. Maksymalnie aktywność powietrza osiągała wartości kilkuset bekereli w metrze sześciennym, przykładowo dla Krakowa było to 300 Bq/m^3 , utrzymujące się przez prawie pół dnia 29.04.1986 [Niewiadomski i Ryba, 1986]. Deszcze padające w maju 1986 przyczyniły się do powstania skażeń nawet na terenach, nad którymi nie przemieszczały się obłoki radioaktywne na przełomie kwietnia i maja 1986 [Żarnowiecki, 1988].

W pierwszych dniach awarii w opadzie i w powietrzu dominowały krótkożyciowe izotopy głównie jodu i telluru [Broda i inni, 1986], dlatego początkowo uwaga koncentrowała się na ^{131}I . W kolejnych miesiącach, a potem latach, badania dotyczyły przede wszystkim ^{137}Cs i ^{134}Cs . Te izotopy cezu są najbardziej istotne z punktu widzenia otrzymywanych dawek od długożyciowych izotopów, a pomiar ich aktywności jest względnie łatwy. Oceniona w Centralnym Laboratorium Ochrony Radiologicznej średnia dawka skuteczna dla mieszkańca Polski od wszystkich izotopów promieniotwórczych - pozostałości katastrofy Czarnobylskiej jest mała i wynosi 0.93 mSv w ciągu 50 lat [PAA, 1991]. Zrewidowane ostatnio na podstawie badań ^{129}I [Pietrzak-Flis i inni, 2003] zrekonstruowane dawki dla mieszkańców Polski Północno-Wschodniej od samego ^{131}I są większe, choć dalej małe, rzędu pojedynczych mSv, a więc porównywalne z roczną dawką skuteczną od tła naturalnego, wynoszącą 2.5 mSv/rok [PAA, 1991]. Z racji krótkiego, wynoszącego niewiele ponad 8 dni, czasu połowicznego zaniku ^{131}I , dawki te zostały otrzymane w okresie pierwszego miesiąca. Górne granice dawek skutecznych dla mieszkańców Polski intensywnie spożywających produkty leśne z najbardziej skażonych terenów oceniono [Mietelski, 1994] na 16 mSv (w ciągu 15 lat). O wielkości dawki skutecznej otrzymywanej przez indywidualnego mieszkańca Polski w wyniku katastrofy czarnobylskiej decydowało i ciągle decyduje praktycznie spożycie grzybów [Mietelski, 1994], zawierających największe aktywności izotopów cezu.

Znakomita większość prac prowadzonych w Polsce jak i w całej Europie po katastrofie czarnobylskiej koncentrowała się właśnie na zagadnieniach związanych z obecnością ^{137}Cs i ^{134}Cs [PAA, 1991] w środowisku naturalnym (lub raczej semi-naturalnym, gdyż w Europie praktycznie nie istnieją już obszary całkowicie naturalne). Wyniki dużej liczby tych prac przyczyniły się do znacznego zwiększenia rozumienia obiegu tego pierwiastka w ekosystemach. Rozkład geograficzny skażeń radiocezem (^{137}Cs i ^{134}Cs) w Polsce był badany na przełomie lat osiemdziesiątych i dziewięćdziesiątych przez trzy niezależne zespoły: CLOR [Biernacka i inni, 1991], IFJ [Mietelski, 1994, Mietelski i inni, 1996 a] oraz PIG [Strzelecki i inni, 1993]. Otrzymane przybliżone mapy zgodne są w zarysie co do generalnego rozkładu geograficznego skażeń, z najwyższymi – przekraczającymi 50 kBq/m^2 depozycjami ^{137}Cs w rejonie Opole-Nysa-Kotlina Kłodzka. W IFJ przygotowano również przybliżone mapy rozkładu skażeń ^{125}Sb , ^{60}Co , ^{106}Ru , ^{144}Ce [Mietelski, 1994, Mietelski i inni, 1996 a]. Natomiast rola innych długożyciowych sztucznych pierwiastków promieniotwórczych w ekosystemach i ich dynamika w środowisku, zwłaszcza tych nie będących emiterami promieniowania gamma, nie była przedmiotem tak starannych badań i jest słabiej poznana. Większość danych pochodzi z badań nad opadem radioaktywnym globalnym, po atmosferycznych testach z bronią jądrową oraz z badań na najsilniej skażonych terenów wokół reaktora, gdzie opadły względnie duże fragmenty reaktora. Skala czasowa rozkładu (korozji, wymywania) fragmentów paliwa jądrowego w środowisku może zależeć od ich rozmiarów, tym samym przenikanie zawartych w nich substancji radioaktywnych do środowiska może różnić w miejscach najsilniej skażonych i w miejscach skażonych tylko opadem rozproszonych drobnych fragmentów [Kashparov i inni, 1999].

Badania prowadzone po katastrofie, między innymi te przedstawione w niniejszej pracy, oraz niektóre symulacje komputerowe [Valkama i inni, 1995; Liljenzin i inni, 1988] potwierdzają sugestię zawartą w pracy doktorskiej autora [Mietelski, 1994], że najprawdopodobniej już w nocy z 26 na 27 kwietnia, a więc na dobę przed wykryciem podwyższonego poziomu radioaktywności w Mikołajkach, skażeniu uległ rejon Suwałki-Augustów. Skażenia nie były wówczas zaobserwowane, gdyż na tym terenie nie znajdowała się żadna stacja systemu wykrywania skażeń radioaktywnych. Wydaje się, że z chmury skażeń przemieszczającej się na połapie co najmniej 500 m nad gruntem w kierunku Skandynawii wypadały aerozole o rozmiarach 5-20 μm , przy przeciętnej średnicy około 10 μm [Valkama i inni, 1995; Liljenzin i inni, 1988]. Pod względem właściwości fizyko-chemicznych cząstki te były zbliżone [Cuddlhy i inni, 1989; Rudhard i inni, 1992] do większych (rzędu nawet 300 μm) cząstek, obserwowanych i następnie szczegółowo zbadanych poprzez wyizolowywanie ich z opadu czarnobylskiego. Nazwano je ogólnie „gorącymi cząstkami” [Devell i inni, 1986; Broda 1987; Broda i inni, 1989, 1992; Jaracz i inni 1990, 1992, 1995; Dovlete, 1990]. Termin „gorące cząstki” odnosić się będzie w niniejszej pracy również do cząstek z opadu czarnobylskiego o średnicach mniejszych, rzędu 5-20 μm , nie dających się łatwo wyizolować, lecz identycznych pod względem składu jak izolowane niegdyś „gorące cząstki”.

Powstałe w wyniku opadu „gorących cząstek” skażenia charakteryzowały się większymi względem ^{137}Cs stężeniami średnio- i długożyciowych izotopów pierwiastków mało lotnych jak: cer (^{141}Ce , ^{144}Ce), cyrkon (^{95}Zr), niob (^{95}Nb) ruten (^{103}Ru , ^{106}Ru), a przy bardziej szczegółowych badaniach również: europ (^{154}Eu , ^{155}Eu) [Osvath, 1991], pluton (^{238}Pu , ^{239}Pu , ^{240}Pu , ^{241}Pu , ^{242}Pu), stront (^{89}Sr , ^{90}Sr), kiur (^{242}Cm , ^{243}Cm , ^{244}Cm), ameryk (^{241}Am) itd. Wymienione izotopy obserwowane były w tzw. "gorących cząstkach typu paliwowego" (ang.: „*fuel-like hot particles*”). Terminem tym określa się drobno zdyspergowane fragmenty paliwa jądrowego, zbudowane z tlenków uranu. Oprócz "gorących cząstkach typu paliwowego" obserwowane były „kondensacyjne gorące cząstki” (ang.: „*particles of condensation origin*”). Były one też nazywane „jednopierwiastkowymi” (ang. „*monoelemental*”) [Vajda, 2001]. Cząstki „kondensacyjne” zbudowane były z metalicznych matryc, zawierających substancje radioaktywne z dominującą aktywnością izotopów jednego pierwiastka. Obserwowano głównie cząstki zawierające izotopy rutenu (^{103}Ru , ^{106}Ru). Bardziej szczegółowa analiza [Broda i inni, 1992] wykazywała obecność w cząstkach rutenowych aktywność ^{125}Sb i ^{60}Co , a analiza składu chemicznego oprócz Ru również Mo, Rh, Fe, Ni i Pd [Vajda, 2001]. W pobliżu reaktora, obserwowano również „gorące cząstki” wykazujące prawie wyłącznie aktywności cezu lub telluru [Viktorova i inni, 1993; Vajda, 2001]. Były one klasyfikowane jako cząstki „kondensacyjne”. Mechanizm formowania cząstek paliwowych wydaje się dosyć oczywisty (rozproszenie paliwa jądrowego w wyniku wybuchu i pożaru), jednak istnieje ciągle pewna kontrowersja na temat mechanizmu powstawania cząstek „kondensacyjnych.” Sama ich nazwa sugeruje, że powstawały na drodze kondensacji par w trakcie pożaru reaktora, jednak opinia części badaczy skłania się ku uznaniu nazwy „kondensacyjne” za co najmniej częściowo mylącą [Schubert i Behrend, 1991; Sandalls i inni, 1993]. W wypalonym paliwie reaktorowym obserwuje się tzw. „białe wtrącenia” (ang. „*white inclusions*”). Osiągają one rozmiary od 5 μm do 20 μm i pod wieloma względami bardzo przypominają „kondensacyjne gorące cząstki” [Vajda, 2001]. Zbudowane są z Mo i Ru lub z Mo, Tc, Ru, Rh i Pd oraz Ni i Fe [Schubert i Behrend, 1987]. Stosując „brzytwę Ockhama” (a więc nie powołując zbędnych bytów do istnienia, lub inaczej mówiąc - upraszczając opis świata tak bardzo jak to jest możliwe, lecz nie bardziej...) należałoby uznać, że „kondensacyjne gorące cząstki” to rozpylone pożarem i wybuchem „białe wtrącenia” [Schubert i Behrend, 1987; Jaracz i inni, 1990]. Istnieją autorzy [np. Kashparov i inni, 1999] próbujący pogodzić oba modele. Twierdzą oni, że oba mechanizmy prowadzące do powstawania „kondensacyjnych gorących cząstek” miały swój udział w ich wytworzeniu – część z nich to po prostu „białe wtrącenia” wyrwane z otaczających je związków uranu, a inna część to kondensaty par wokół zarodki kondensacji, którymi mogły być też „białe wtrącenie” lub drobiny żelaza. Zarówno cząstki typu paliwowego jak i „kondensacyjne” różnią się znacznie pod względem morfologicznym. Przyjmuje się, że cząstki o nieregularnych kształtach pochodzą z wybuchu, natomiast inne, posiadające bardziej obłe formy powstały w wyniku przetopienia, lub nadtopienia, w wysokiej temperaturze pożaru [Salbu, 2001; Vajda, 2001]. Pochodzące z wybuchu cząstki paliwowe, oprócz baraku wyraźnych śladów działania wysokiej temperatury charakteryzują się tym, że uran w nich występuje w formie tlenku uranu na czwartym stopniu utlenienia (UO_2). Cząstki takie znajdują się przede wszystkim wzdłuż tzw. zachodniego śladu

chmury czarnobylskiej [Salbu, 2001], a więc w śladzie po chmurze materiału radioaktywnego rozproszonego wybuchem i początkową fazą pożaru. Można spodziewać się ich również w Polsce. W cząstkach paliwowych znajdujących w kierunku północno-wschodnim od reaktora (np. rejon Homla) uran znajduje się na wyższych od stopniach utlenienia, głównie jako U_2O_5 i U_3O_8 . Bardziej utlenione formy U (V,VI) miałyby powstać w wyniku długotrwałego pożaru [Salbu, 2001]. W środowisku przyrodniczym stanowią łatwiej rozpuszczalną matrycę.

Długożyciowymi radionuklidami, które dotarły w „gorących cząstkach typu paliwowego” i nadal pozostają na mierzalnych poziomach aktywności do dziś są przede wszystkim izotopy plutonu (^{238}Pu , ^{239}Pu , ^{240}Pu , ^{241}Pu , ^{242}Pu), ^{241}Am oraz ^{90}Sr . Znajdują się one w przyrodzie również na skutek wcześniejszych testów broni jądrowej. W odróżnieniu od pożaru reaktora czarnobylskiego, gdzie temperatura nie przekraczała $1800\text{ }^{\circ}C$, temperatura wybuchu jądrowego przeprowadza bez wątpienia całą materię w stan plazmy, która następnie rekombinuje oraz tworzy kondensaty. W opadzie globalnym również znajdowano „gorące cząstki” [Edvarson i inni, 1959; Kern, 1960; Vajda, 2001]. Przypuszcza się, że musiały one powstawać w procesie kondensacji par fragmentów rozszczępienia i aktywacji, ponadto z odparowanych i zaktywowanych elementów konstrukcyjnych oraz z zaktywowanych i stopionych cząstek gleby porwanych przez kulę ognistą w czasie wybuchu [Vajda, 2001].

Środowiskowe i fizykochemiczne właściwości rozpylonego paliwa jądrowego, poddanego działaniu wysokiej temperatury (model „gorących cząstek typu paliwowego”) i rzeczywiście, wyizolowane „gorące cząstki” pobrane w rejonie Czarnobyla badane były bardzo szczegółowo w projekcie Unii Europejskiej „RAFF” [Bouchama i inni, 1999], realizowanym przez konsorcjum laboratoriów z Finlandii, Norwegii i Belgii. Stwierdzono wówczas, że czynnikami wpływającymi na tempo rozkładu w środowisku „gorących cząstek” są przede wszystkim: rozpuszczalność matrycy zależna od stopnia utlenienia U i skali przetworzenia termicznego cząstki, wielkość cząstek, kwasowość gleby (większa w kwaśnych), aktywność biologicznej gleby. Osiągnięciem tego programu było wykazanie istnienia tzw. erozji mikrobiologicznej – roli mikroelementów w procesie dekompozycji „gorących cząstek” (zagadnienie to będzie poruszane w niniejszej pracy w jednym z następnych podrozdziałów). Najciekawszymi ustaleniami programu „RAFF” w aspekcie dozymetrycznym były ustalenia mikrodozymetryczne, gdzie stwierdzono, że pojedyncza cząstka paliwowa o średnicy $30\text{ }\mu m$ wywołuje w sąsiadujących z nią komórkami dawkę 1 mGy już po 1 godzinie, a cząstka rutenowa wywołująca taką dawkę ma średnicę $8\text{ }\mu m$.

W pracy [Mietelski, 1994] wstępnie szacowano dawkę skuteczną w wyniku inhalacji małych gorących cząstek – wynosiła ona około 0.05 mSv , była więc porównywalna z efektywną dawką inhalacyjną dla mieszkańca Krakowa [Cywicka-Jakiel i inni, 1988] otrzymaną przy przejściu czarnobylskiej chmury. Efektywne dawki zewnętrzne od promieniowania gamma zdeponowanych na gruncie „gorących cząstek” mogły mieć jakieś znaczenie tylko w pierwszym roku po katastrofie [Mietelski, 1994], gdyż pochodziła głównie od ^{95}Zr , ^{95}Nb i ^{103}Ru .

1.2. Pluton

1.2.1. Właściwości fizykochemiczne plutonu

Pluton (Pu) to transuranowiec należący do grupy III b układu okresowego pierwiastków. Ma on liczbę atomową $Z=94$, a najtrwalszy jego izotop ma liczbę masową $A=244$. Pluton nie posiada stabilnego izotopu. W formie metalicznej ma temperaturę topnienia $639.5^{\circ}C$ a temperaturę wrzenia $3235^{\circ}C$ [Kudo, 2001]. Odkryto sześć odmian alotropowych metalicznego Pu. Wszystkie charakteryzują się dużą gęstością np. równą 19.84 g/cm^3 w $25^{\circ}C$ dla podstawowej odmiany tzw. alfa. Ciekawostką jest to, że Pu ma największą z metali oporność elektryczną [Kudo, 2001].

Podstawowe właściwości fizyczne izotopów plutonu zestawiono w tabeli 1. Konfiguracja elektronowa Pu to: $1s^2 2s^2 2p^6 3s^2 3p^6 d^{10} 4s^2 4p^6 d^{10} f^{14} 5s^2 5p^6 d^{10} f^6 6s^2 6p^6$. Pu może występować w związkach chemicznych na różnych stopniach utlenienia: (III, IV, V, VI oraz rzadko na 0 i VII). W warunkach środowiskowych Pu stanowi zazwyczaj mieszaninę różnych stanów [Choppin, 1988]. W roztworach wodnych Pu (III i IV) występuje jako jony Pu^{+3} i Pu^{+4} , natomiast Pu (V i VI) jako odpowiednio jony PuO_2^+ i PuO_2^{2+} [Choppin i Morgenstern, 2001].

Przyjmuje się [Choppin i Morgenstern, 2001], że w środowisku najczęściej spotyka się Pu na IV i V stopniu utlenienia, a w warunkach beztlenowych stany Pu (III). Pod względem właściwości chemicznych Pu (IV) najbardziej przypomina Th (IV) i w mniejszym stopniu cer, europ i inne pierwiastki ziem rzadkich [Kudo, 2001]. Rozpuszczalność form plutonu w wodnych roztworach jest wyższa dla Pu (V) niż dla Pu(IV) [Choppin, 1988]. Rozpuszczalność Pu zależy też od pH, potencjału redox i obecności związków organicznych [Bondietti, 1982; Eisenbud, 1987; Choppin i Morgenstern, 2001]. Przyjmuje się, że przy pH spotykanych w środowisku naturalnym jony Pu hydrolizują i ulegają adsorpcji na powierzchniach ziaren mineralnych [Choppin, 1988]. Dla Pu (III) granica ta przebiega przy pH=5, dla Pu (IV) przy pH~1 dla Pu (V) przy pH=9 a dla Pu (VI) przy pH=7 [Choppin i Morgenstern, 2001]. Zwraca się uwagę na kompleksowanie jonów Pu⁺⁴ przez substancje organiczne zawarte w glebie. Ważną rolę odgrywają tu zwłaszcza kwasy humusowe i fulwowe [Yamamoto i inni, 1981; Choppin, 1988; Fujikawa i inni, 1999; Choppin i Morgenstern, 2001]. Zjawisko to umożliwia częściową mobilność Pu w środowiskach zasadowych [Fujikawa i inni, 1999]. Kompleksy z kwasem humusowym tworzą polimery PuO₂ adsorbowane na powierzchniach makropolimerów tych kwasów [Choppin i Morgenstern, 2001] oraz jony Pu⁺³. W wodach gruntowych Pu tworzy roztwory koloidowe, najczęściej w postaci Pu (IV), potem Pu (VI, III i V) [Choppin i Morgenstern, 2001].

Tabela 1 . Charakterystyka wybranych izotopów plutonu [Browne i Firestone, 1986]; zob. też <http://chemlab.pc.maricopa.edu/periodic/Pu.html>.

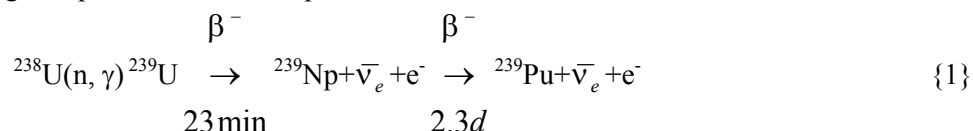
liczba masowa A	czas półrozpadu T _{1/2}	Typ rozpadu i średnia na rozpad energia emitowanego promieniowania, dla rozpadów beta energia max. [MeV].
232	34 m	α (6.60), ε;
233	20.9 m	ε; γ(0.235,0.536)
234	8.8h	ε, α (6.20);
235	25.3 m	ε, α (5.85); γ(49,756)
236	2.85 lat	α (5.77)
237	45.3 d	ε; γ(0.060)
238	87.7 lat	α (5.50)
239	24100 lat	α (5.15)
240	6540 lat	α (5.15)
241	14.4 lat	β ⁻ (0.021), α (4.89)*
242	376 000 lat	α (4.90)
243	4.95 h	β ⁻ (0.6); γ(0.084)
244	82.6·10 ⁶ lat	α (4.60)
245	10.5 h	β ⁻ (0.9); γ(0.327, 0.560)
246	10.9 d	β ⁻ (0.2); γ(0.044,0.224)

* - prawdopodobieństwo emisji na poziomie 0.001;

Oznaczenia: α,β,γ - odpowiednie rodzaje promieniowania, ε - wychwytywanie elektronu..

1.2.2. Pluton na Ziemi

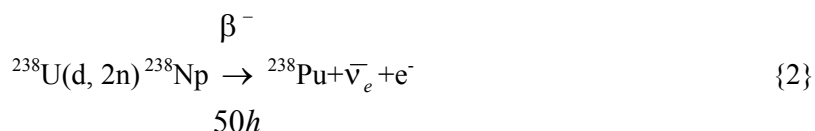
Śladowe ilości ²³⁹Pu występują naturalnie na Ziemi. Wytwarzany jest on pod wpływem neutronów naturalnego tła promieniowania w procesie:



Najwyższe stężenia naturalnego Pu, sięgające $\sim 10^{-11} \div 10^{-13}$ g/g, występują w rudach uranowych [Seaborg i Perlman, 1948; Peppard i inni, 1951, Taylor 2001], przy średniej koncentracji naturalnego Pu w skorupie ziemskiej wynoszącej 2×10^{-14} g/kg [Taylor, 2001]. W skali globu tempo produkcji naturalnego ²³⁹Pu wynosi od 4 do 30 kg/rok [Taylor, 2001]. W niektórych złożach mineralnych, np. w złożach rud ziem rzadkich znajduje się mierzalne ilości również ²⁴⁴Pu [Fields i inni, 1966]. Jego pochodzenie nie jest jasne. Wydaje się, że ten izotop jest wytwarzany również w

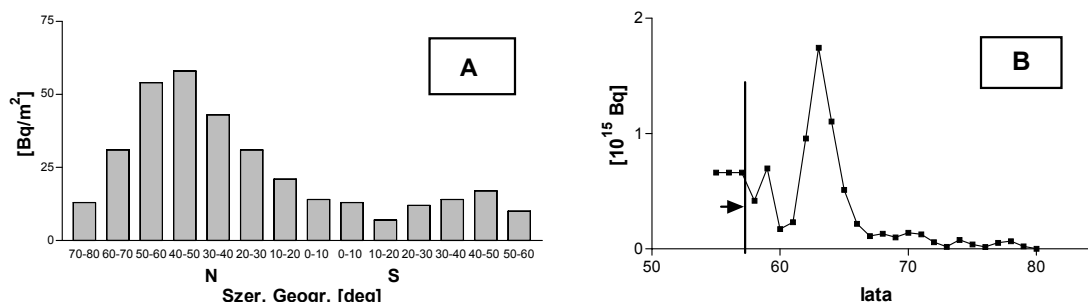
reakcjach aktywacji U i kolejnych rozpadach beta minus. Należy podkreślić, że z racji swojego czasu połowicznego zaniku izotop ten musiał być obecny w znacznie większych ilościach we wczesnych fazach powstawania życia na Ziemi [Taylor, 2001] – ślady w ilościach rzędu 10 g w skali całego globu pozostały do dziś. Przypuszcza się, że ^{244}Pu może pochodzić z opadu materii kosmicznej ze stałego źródła [Hoffman i inni, 1971] lub ze względnie bliskiego i niezbyt odległego w geologicznej skali czasu wybuchu supernowej [Choppin i inni, 1995].

Pluton odkryto w 1940 r. [Seaborg i inni, 1946] w eksperymencie prowadzonym w Berkeley z wykorzystaniem cyklotronu o średnicy nabiegunków 150 cm, przy energii deuteronów 32 MeV w reakcji:



W 1941 odkryto rozszczepialny izotop ^{239}Pu , przez co zainteresowanie tym pierwiastkiem gwałtownie wzrosło. Otrzymywanie Pu na skalę laboratoryjną rozpoczęto w 1942, a na skalę przemysłową w 1944. Pluton znalazł przede wszystkim zastosowanie militarne jako materiał rozszczepialny stosowany w ładunkach jądrowych. Masa krytyczna dla ^{239}Pu wynosi [Kudo, 2001] co najmniej 250–300 g („co najmniej” gdyż masa krytyczna zależy też od formy geometrycznej ładunku). Oprócz zastosowań militarnych próbowano wykorzystać Pu w innych celach. Izotop ^{238}Pu stosowano w czujnikach dymów oraz w amerykańskich ogniach izotopowych SNAP (Satellite Nuclear Auxiliary Power). Próbowano wykorzystać w metalurgii ^{244}Pu jako dodatku do stopów. Cywilizacja ziemską wytworzyła około 1200 t plutonu [Taylor, 1995]. Ocenia się, że militarne zapasy wydzielonego Pu [Ibrahim, 1995] w poszczególnych krajach wynoszą: Federacja Rosyjska 130 t, USA 89 t, Francja 6 t, Wielka Brytania 3 t, ChRL 2.5 t, Izrael od 350 do 700 kg, Indie 360 kg. Znaczące ilości Pu posiadają ponadto Argentyna, Brazylia, KRLD i Pakistan. Obecne tempo produkcji plutonu utrzymuje się na poziomie około 20 t/rok.

Na skutek działalności człowieka, w środowisku przyrodniczym obecne są izotopy alfa-promieniotwórcze plutonu: ^{238}Pu , ^{239}Pu , ^{240}Pu , ^{242}Pu i ^{244}Pu oraz prawie czysto beta-promieniotwórczy ^{241}Pu , z którego powstaje ^{241}Am (^{241}Pu z małym prawdopodobieństwem, rzędu 0.1%, ulega też rozpadowi alfa, w wyniku czego powstaje ^{237}U). Uwolnienia do środowiska Pu związane były przede wszystkim z atmosferycznymi testami broni jądrowej. W latach 1945-1963 przeprowadzono w otwartej atmosferze 423 wybuchy jądrowe i termojądrowe. Do atmosfery dostało się [Taylor, 1995] około 4.5 t ^{239}Pu , 1 t ^{240}Pu , 200 kg ^{242}Pu , 95 kg ^{241}Pu , 1kg ^{238}Pu i bliżej nie znana, ale mała, masa ^{244}Pu . Po testach wystąpiło zjawisko określane mianem „globalnego opadu promieniotwórczego” – cała powierzchnia globu została skażona (w różnym stopniu) rozproszonymi w wybuchach substancjami. Czas połowicznego „wypadania” Pu z atmosfery oceniano się na 4 lata [UNSCEAR, 1982]. Dodatkowy 1 kg ^{238}Pu rozproszonego w środowisku pochodzi z katastrofy amerykańskiego satelity SNAP-9A. Do katastrofy – splotenia w czasie wejścia w atmosferę - doszło w kwietniu 1964 roku nad Madagaskarem na wysokości w przybliżeniu 50 km, a więc w stratosferze, co spowodowało, że opad ten objął swoim zasięgiem całą Ziemię [UNSCEAR, 1982].



Rys. 1. Średnia skumulowana depozycja $^{239+240}\text{Pu}$ dla pasów szerokości geograficznej (A) i przebieg czasowy depozycji $^{239+240}\text{Pu}$ w skali globu (B). Przed 1958 szacowane [UNSCEAR, 1977 i 1982].

Przyjmuje się [UNSCEAR, 1982], że średnia depozycja $^{239+240}\text{Pu}$ z globalnego opadu promieniotwórczego po testach z bronią jądrową, dla pasa szerokości geograficznej 50-60 °N wynosiła 58 Bqm^{-2} , a w przypadku ^{238}Pu , z uwzględnieniem opadu po katastrofie satelity SNAP 9A, wynosiła 2.3 Bqm^{-2} . Wartości średniej skumulowanej depozycji $^{239+240}\text{Pu}$ z opadu globalnego w funkcji szerokości geograficznej [UNSCEAR, 1977] i przebieg czasowy depozycji [UNSCEAR, 1982] przedstawiono na rysunku 1.

Główną metodą stosowaną dotychczas do oznaczania plutonu w środowisku jest spektrometria promieniowania alfa, dlatego o praktycznej wykrywalności danej substancji decyduje nie jej obecność masowa lecz aktywność. W tabeli 2 zestawiono porównanie aktywności jednego grama danego izotopu Pu i masy odpowiadające aktywności 1 Bq. Z porównania danych widać, że znacznie łatwiej wykrywalna tą metodą jest skażenie całego globu dwoma kilogramami ^{238}Pu niż 200 kg ^{242}Pu . Ostatnio gwałtownie wzrasta liczba prac analitycznych, w których dla oznaczania plutonu wykorzystuje się technikę spektrometrii masowej, przez co wzrasta zainteresowanie skażeniami ^{242}Pu , dotychczas wykorzystywanym jedynie w roli znacznika radioanalitycznego.

Tabela 2. Zestawienie aktywności 1 g danego izotopu Pu i masy odpowiadające aktywności 1 Bq

Izotop	Aktywność 1 g	Masa 1 Bq
^{238}Pu	675 GBq	1.48 pg
^{239}Pu	2.46 GBq	0.407 ng
^{240}Pu	9.05 GBq	0.110 ng
^{241}Pu	4.11 TBq	0.243 pg
^{242}Pu	154 MBq	6.49 ng
^{244}Pu	716 kBq	1.40 μg

Oprócz skażenia globalnego Ziemi (po testach z bronią jądrową) istnieje szereg bardziej lokalnych źródeł skażeń izotopami Pu. Można wymienić tu katastrofę czarnobylską, która uwolniła do środowiska [IAEA, 1986] jedynie około 14 kg izotopów ^{239}Pu , 4 kg ^{240}Pu , 48 g ^{238}Pu , 1.4 kg ^{241}Pu i śladowe ilości ^{242}Pu . Większość tej masy jest zdeponowana w odległości nie przekraczającej kilkudziesięciu kilometrów od reaktora. Część najdrobniej rozpylonego paliwa zawierającego Pu była transportowana drogą powietrzną na większe odległości. Aerozole o średnicach 10 μm mogły dolatywać na odległość kilkuset km, mniejsze dalej. Poważniejszymi uwolnieniami [UNSCEAR, 1993] mogą „pochwalić się” zakłady przeróbki paliwa jądrowego, przede wszystkim rosyjski „Majak” w Czelanbińsku-65, gdzie do jeziora Karczaj i częściowo dalej do rzeki Tieczy wpuszczono około 5 t plutonu. Działo się to głównie w latach pięćdziesiątych XX w. Angielskie zakłady w Sellafield (b. Windscale) wprowadziły, głównie w latach 1971-79, do Morza Irlandzkiego około 185 kg Pu. Za sprawą Prądu Zatokowego wywołało to skażenia Morza Północnego i częściowo Oceanu Arktycznego. Francuskie zakłady w Cape La Hague koło Hawru nad Kanałem La Manche uwolniły dalsze tylko 2 kg Pu [UNSCEAR, 1993]. W katastrofach przenoszących broń jądrową bombowców Boeing B-52 w okolicach Palomares w Hiszpanii i w pobliżu bazy Thule na Grenlandii rozproszono po blisko 0.5 kg $^{239+240}\text{Pu}$ [Dahlgaard i inni, 2001]. Uwolnienia z amerykańskich zakładów produkcji Pu w Savannah River były o rząd wielkości niższe [Hinton i Pinder, 2001]. W porównaniu z tym wszystkie normalnie eksploatowane elektrownie jądrowe wprowadzają znikome ilości Pu. Więcej mogło zostać uwolnione z laboratoriów, przede wszystkim militarnych. Ocenia się te uwolnienia na łącznie mniejsze niż 0.5 kg.

1.2.3. Toksyczność i radiotoksyczność plutonu

Pluton jest silnie toksyczny, ale przede wszystkim jest wysoce radiotoksyczny. Główną drogą narażenia radiacyjnego wywołane przez Pu jest inhalacja aerozoli zawierających pluton [ICRP 1986]. Radiotoksyczność i metabolizm Pu dla człowieka były przedmiotem intensywnych badań, kilkakrotnie podlegały gruntownie ponownej ocenie [ICRP, 1972; 1986; 1993; Newton i Dmitriev, 2001]. Najgroźniejsza jest inhalacja aerozoli o średnicach w zakresie $\phi=0.5-5 \mu\text{m}$. Przykładowo w klasycznym raporcie International Commission on Radiation Protection Publication No. 19 [ICRP, 1972] przyjmowało się, że 25% inhalowanego w postaci tlenku Pu w zatrzymuje się w płucach, z czego 60% wydalanych jest z czasem biologicznego połowicznego zaniku $T_{b1/2}=500$ dni. Zgodnie z tym raportem 19.5% zainhalowanego Pu miało dostawać się do krwioobiegu, z czego: 45% gromadziłoby się w kościach z czasem biologicznego półżaniku $T_{b1/2}=70$ lat, 45% znajdowałoby się w wątrobie ($T_{b1/2}=35$ lat), a pozostałe 10% dostawałoby się przede wszystkim do śledziony. W kolejnych raportach Międzynarodowej Komisji Ochrony Radiologicznej [ICRP, 1986; 1993], przyjmowano mniejszą kumulację we wątrobie i tak w ustaleniach raportu ICRP no. 67 [ICRP, 1993] twierdzi się, że 30% Pu gromadzi się w wątrobie, 50% kościach a pozostałe 20% jest rozproszonych w pozostałych organach lub jest szybko wydalanych. Skrócono też przyjmowane czasy biologicznego połowicznego zaniku do 20 lat dla wątroby i 50 lat dla szkieletu. Natomiast z najnowszych badań [Newton i Dmitriev, 2001], przeprowadzonych na ochothnikach, z wykorzystaniem ultra-czystego gamma promieniotwórczego izotopu ^{237}Pu i liczników całego ciała oraz ultra-czystego ^{244}Pu i techniki akceleratorowej spektrometrii masowej (AMS) wynika, że w wątrobie gromadzi się średnio aż 73% wchłoniętego do organizmu Pu, przy czym proces ten ma charakter powolnego nagromadzenia, osiągając stan nasycenia po kilkudziesięciu dniach (co tłumaczy wcześniejsze niedoszacowanie). Stwierdzono różnicę pomiędzy przedstawicielami różnych płci w czasach biologicznego połowicznego zaniku Pu (kobiety wydalają Pu szybciej) [Newton i Dmitriev, 2001].

Przy spożyciu (drogą pokarmową) plutonu jako PuO_2 współczynnik wchłonięcia jest bardzo niski, wynosi $5 \cdot 10^{-4}$. Dla niemowląt jest większy i wynosi 0.005 [ICRP, 1993]. Oznacza to, że znakomita większość spożywanego Pu jest wydalana w odchodach. Limit dawki 50 mSv na rok dla osoby zawodowo narażonej na kontakt z promieniowaniem osiąga się przy zawartości w organizmie około 500 Bq ^{239}Pu , co odpowiada masie Pu rzędu 0.2 μg . Zestawienie współczynników stosowanych dla obliczeń skutecznych dawek obciążających po wchłonięciu, drogą pokarmową lub inhalacyjną, jednostkowych aktywności poszczególnych izotopów Pu przedstawiono w tabeli 3.

Stwierdzono jednak, że w innych formach chemicznych (np. jako cytrynian), pluton jak i inne transuranowce może być znacznie łatwiej przyswajany drogą pokarmową [Bulman, 1978].

Tabela 3. Skuteczna dawka obciążająca dla osób postronnych przy jednostkowym wchłonięciu plutonu [Sv/Bq], dla różnych grup wiekowych za [Euroatom, 1996; ICRP, 1993]

Izotop	Spożycie / wiek[lat]			Inhalacja / wiek[lat]		
	<1	2-7	>17	<1	2-7	>17
^{238}Pu	$4.0 \cdot 10^{-6}$	$4.0 \cdot 10^{-7}$	$2.3 \cdot 10^{-7}$	$2.0 \cdot 10^{-4}$	$1.4 \cdot 10^{-4}$	$1.1 \cdot 10^{-4}$
^{239}Pu	$4.2 \cdot 10^{-6}$	$4.2 \cdot 10^{-7}$	$2.5 \cdot 10^{-7}$	$2.1 \cdot 10^{-4}$	$1.5 \cdot 10^{-4}$	$1.2 \cdot 10^{-4}$
^{240}Pu	$4.2 \cdot 10^{-6}$	$4.2 \cdot 10^{-7}$	$2.5 \cdot 10^{-7}$	$2.1 \cdot 10^{-4}$	$1.5 \cdot 10^{-4}$	$1.2 \cdot 10^{-4}$
^{241}Pu	$5.6 \cdot 10^{-8}$	$5.7 \cdot 10^{-9}$	$4.8 \cdot 10^{-9}$	$2.8 \cdot 10^{-6}$	$2.6 \cdot 10^{-6}$	$2.3 \cdot 10^{-6}$

W sensie tolerowanych stężeń chemicznych pluton jest porównywalny [Zmysłowski, 1991]:

- przy spożyciu (PuO_2) z octanem ołowiowym (100-krotnie mniej toksyczny od cyjanków, 10-krotnie bardziej toksyczny od arseniku),
- przy bezpośrednim wstrzyknięciu do krwioobiegu z jadem okularnika (10 cio-krotnie bardziej toksyczny od kurary),
- przy inhalacji (PuO_2) jest stukrotnie bardziej toksyczny od fosgeny lub pyłu kadmowego.

Graniczne dla skutków ostrych stężenie Pu w organizmie człowieka (i innych ssaków) wynosi [Zmysłowski, 1991] 300 ppb (tj. $3 \cdot 10^{-7}$ g/g), co dla ^{239}Pu równoważne jest (tabela 2) stężeniu aktywności 750 kBq/kg.

1.2.4. Pluton w Polsce

Przyjmuje się, że nie istnieją w Polsce własne źródła uwalniające Pu do środowiska. Występujący w środowisku naturalnym (właściwie semi-naturalnym) Polski Pu pochodzi z tzw. opadu globalnego po testach z bronią jądrową i z opadu po katastrofie czarnobylskiej. Do opadu globalnego włącza się pluton pochodzący z katastrofálnego ponownego wejścia w atmosferę satelity amerykańskiego SNAP 9A. Rozróżnienie źródła pochodzenia Pu możliwe jest dzięki analizie stosunków izotopowych (mas lub aktywności) Pu w próbce. W celu rozróżnienia plutonu z opadu globalnego od pochodzącego z opadu czarnobylskiego najczęściej wykorzystuje się stosunek aktywności $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$. Ostatnie dwa izotopy traktowane są łącznie z racji praktycznie identycznej energii cząstek alfa emitowanych przez nie, wynoszących 5.15 MeV (w razie takiej potrzeby analizę stosunku ich aktywności wykonuje się metodami spektrometrii masowej). Dla opadu globalnego [UNSCEAR 1982], z uwzględnieniem katastrofy SNAP-9A, wartość stosunku aktywności ^{238}Pu do $^{239+240}\text{Pu}$ wynosi na półkuli północnej od 0.03 do 0.05. Dla półkuli południowej jest znacznie wyższa i wynosi 0.21 [UNSCEAR 1982]. Natomiast dla katastrofy czarnobylskiej jego wartość zmierzona przez różnych autorów waha się od 0.30 ± 0.05 [Pavlovska i Myasoyedev, 1991] do 0.65 [Pietruszewski i Bojanowski, 1990]. Podawane są też pośrednie wartości z zakresu 0.45-0.60, [IAEA, 1986; 1991; Bunzl i Kracke, 1990; Skwarzec, 1995]. Jakościowo, wzrost natężenia linii widmowej o energii 5.49 MeV ^{238}Pu względem linii 5.15 MeV (sumarycznej linii ^{239}Pu i ^{240}Pu) jest sygnałem obecności Pu pochodzenia czarnobylskiego w próbce. Ilościowo, udział ten ocenia się rozwiązując prosty układ równań [Mietelski, 1994]:

$$\begin{cases} A_{239} = A_g + A_{ch} \\ A_{238} = \zeta A_g + \xi A_{ch} \end{cases} \quad \{3\}$$

gdzie: A_{239} lub A_{238} - obserwowane aktywności $^{239+240}\text{Pu}$ lub ^{238}Pu , A_g - nieznaną *a priori* część aktywności $^{239+240}\text{Pu}$ pochodząca z globalnego opadu, A_{ch} - aktywność $^{239+240}\text{Pu}$ dla składowej czarnobylskiej, ζ - stosunek aktywności $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ w globalnym opadzie, ξ - stosunek aktywności $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ dla opadu czarnobylskiego.

Jako rozwiązanie otrzymujemy:

$$A_{ch} = (A_{238} - \zeta A_{239}) \cdot (\xi - \zeta)^{-1} \quad \{4\}$$

$$A_g = (\xi A_{239} - A_{238}) \cdot (\xi - \zeta)^{-1} \quad \{5\}$$

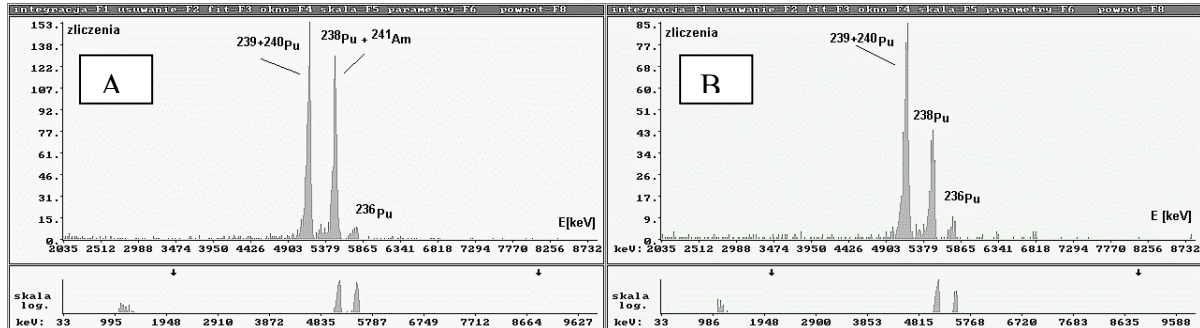
Procentowy udział składowej czarnobylskiej F wynosi więc:

$$F = A_{ch} (A_{239})^{-1} = [A_{238} (A_{239})^{-1} - \zeta] \cdot (\xi - \zeta)^{-1} \cdot 100\% \quad \{6\}$$

Podobnie można analizować udziały opadu globalnego i czarnobylskiego w próbkach na podstawie znanych wartości stosunku aktywności (lub ilości atomów czy też mas) w każdym z tych opadów dowolnej pary izotopów tego samego pierwiastka, lub nawet dwóch pierwiastków o podobnych własnościach (np. Am, Cm). Przykładowo, masowy stosunek izotopowy ^{240}Pu do ^{239}Pu w skumulowanym opadzie globalnym wynosi 0.180 ± 0.014 [Kelley i inni, 1999], a w opadzie czarnobylskim około 0.4 [Muramatsu i inni, 2000].

Pluton pochodzenia czarnobylskiego odkryto w Polsce we względnie dużych „gorących cząstkach typu paliwowego” [Broda i inni, 1989], transportowanych drogą powietrzną względnie dużych fragmentach paliwa jądrowego, o średnicach rzędu od kilkudziesięciu do kilkuset mikronów. Tak duże aerozole nie są najbardziej istotne z punktu widzenia dozymetrii, gdyż nawet jeśli zostają inhalowane, to osiadają w nosie lub krtani i względnie szybko są usunięte z organizmu. Stężenie $^{239+240}\text{Pu}$ transportowanego drogą powietrzną w chmurze czarnobylskiej, zmierzone w Warszawie na przełomie kwietnia i maja 1986, wynosiło [Pietruszewski i Bojanowski, 1990] $5.7 \cdot 10^{-6}$ względem aktywności ^{137}Cs . Stosunek ten pozostawał w przybliżeniu stały, gdyż aktywności plutonu i cezu w powietrzu były ze sobą skorelowane. Pozwala to oszacować aktywność $^{239+240}\text{Pu}$ zdeponowanego wraz

z ^{137}Cs , a więc transportowanego na bardzo małych, mikronowych i submikronowych aerozoluach. Maksymalny opad ^{137}Cs pochodzenia czarnobylskiego w Polsce [Biernacka i inni, 1991; Strzelecki i inni 1993, Mietelski 1994] był rzędu 50 kBq/m^2 (na Śląsku Opolskim). Stąd, maksymalny opad $^{239+240}\text{Pu}$ wraz z frakcją małych aerozoli można ocenić na około 0.3 Bq/m^2 , a wartość średnią na o rząd wielkości niższą.



Rys. 2. Widma promieniowania alfa plutonu wydzielonego (w 1993) z próbki opadu czarnobylskiego pobranej 1.05.1986 na terenie IFJ. (A) widmo zmierzone w roku 2000, zawierające narośnięty ^{241}Am z rozpadu ^{241}Pu , (B) widmo tego samego preparatu zaraz po oczyszczeniu z produktów rozpadów Pu.

W 1993 roku autor przygotował alfa-spektrometryczne źródło plutonu wydzielonego z próbki opadu czarnobylskiego (wody deszczowej zawierającej również materiał pochodzący z depozycji suchej) pobranej dnia 1.05.1986 na terenie IFJ. Wykonano wstępny pomiar, jednak wówczas posiadany, improwizowany spektrometr promieniowania alfa nie był dostatecznie stabilny dla precyzyjnego pomiaru tak niskiej aktywności. Pomiar powtórzono na spektrometrze Canberra 7401 w w 1995 roku (z detektorem SBSi wyprodukowanym w IFJ) oraz w 2000 roku na spektrometrze Silena AlphaQuattro z detektorem Canberra PIPS (rys. 2 A). Po ostatnim pomiarze próbkę oczyszczono z produktów rozpadu, ponownie wykonano źródło i kolejny raz zmierzono (rys. 2b). Obliczona (niepublikowana dotychczas) wartość stosunku aktywności ^{238}Pu do $^{239+240}\text{Pu}$ dla tej próbki wynosi 0.558 ± 0.038 (na dzień 1.05.1986). Wartość ta potwierdza przyjmowaną wcześniej przez autora dla próbek z Polski wartość tego stosunku równą 0.55. Należy jednak zwrócić uwagę na fakt, że rozpad promieniotwórczy zmniejszył głównie aktywność ^{238}Pu ($T_{1/2}=87.7$ lat), przez co spowodował zmniejszenie tego stosunku o około 13%, tak że np. w roku 2000 należałoby przyjmować wartość 0.485 ± 0.034 (na 1.09.2000). Symptomatycznym jest, że wartość tego stosunku wyznaczana przez wszystkich polskich autorów [Pietruszewski i Bojanowski, 1990; Skwarzec 1995] jest wyższa od wyników badań wykonanych na terenach najsilniej dotkniętych katastrofą, jak przytaczano powyżej. Wartość ta jest również nieznacznie wyższa od wyników niemieckich [Bunzl i Kracke, 1990]. Prawdopodobnie jest to związane z tym, że Polscy badacze rozpoczęli analizy pod kątem obecności plutonu z Czarnobyla po roku 1989, gdy aktywność ^{238}Pu uległa wzrostowi w wyniku całkowitego rozpadnięcia się znacznie bardziej aktywnego ^{242}Cm ($T_{1/2}=160$ dni). Inne objaśnienie tego efektu będzie dyskutowane jeszcze przy okazji badań skażeń plutonem roślin (III.3.4.)

Porównanie pomiarów oczyszczonego z produktów rozpadu źródła (opisywanego powyżej) z tym samym źródłem przed oczyszczeniem pozwoliło również ocenić wartość stosunku aktywności $^{241}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ jako równą 59 ± 10 (na dzień 1.05.1986). Sposób obliczenia tej proporcji opisany jest w dalszej części pracy (III.1.3.) przy okazji opisu jej zastosowania do obliczania aktywności ^{241}Pu w próbkach ściółek leśnych. Jak wspomniano powyżej zarówno ^{241}Pu jak i ^{241}Am były obecne w środowisku po atmosferycznych testach broni jądrowej. Bezpośrednio przed katastrofą czarnobylską (wiosna 1986) stosunek aktywności $^{241}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ w pozostałościach opadu globalnego wynosił 4.2, a $^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$ 0.3 [UNSCEAR, 1982]. Stosunek aktywności $^{241}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ w opadzie czarnobylskim można wyznaczyć korzystając ze wzoru:

$$\frac{A_{241,Ch}}{A_{Ch}} = \frac{A_{241} - 4.2 \cdot (1 - F/100\%) \cdot A_{239}}{(F/100\%) \cdot A_{239}} = \frac{(A_{241} / A_{239}) - 4.2 \cdot (1 - F/100\%)}{(F/100\%)} \quad \{7\}$$

gdzie: A_{241} i A_{ch} stężenia aktywności dla ^{241}Pu i $^{239,240}\text{Pu}$ (dodatkowy indeks „Ch” oznacza składową czarnobylską), F jest znane, zdefiniowane równaniem {6}. Czynniki 4.2 jest stosunkiem aktywności ^{241}Pu do $^{239+240}\text{Pu}$ w pozostałościach opadu globalnego dla roku 1999. We wczesnych latach sześćdziesiątych wartość ta wynosiła dla naszych szerokości geograficznych 12.6 [UNSCEAR,1982].

Tabela 4. Zestawienie danych o aktywności izotopów Pu w glebach, ściółkach i osadach dennych zaobserwowanych w próbkach z Polski od początku lat dziewięćdziesiątych XX w. (z wyjątkiem wyników prac prowadzonych przez autora, szerzej omówionych później w niniejszej pracy).

Rodzaj próbki	Obszar badań	$^{239+240}\text{Pu}$ [Bq/kg s.m.]	^{238}Pu [Bq/kg s.m.]	F [%]	Literatura
Gleba leśna	Lublin	1.18 ^x	0.125	13 ^a	Komosa i inni, 1993
Osad rzeczny	Lublin	0.050±0.036 ^a	0.005±0.005 ^a	0÷35 /13 ^a	Komosa, 1999b
Gleba	Lublin	0.08÷0.34 ^r /0.21±0.08/ ^a	0.003÷0.036 ^r /0.02±0.02/ ^a	0÷35 ^r	Komosa, 1996
Gleba leśna	Lublin	1.405±0.034 ^x		0÷20 ^r	Komosa, 1999a
Gleba	Borne Sulinowo	0.27 ^x	0.015 ^x	5 ^a	Komosa, 1998
Ściółka	Barania Góra	2.19÷10.8 ^r	0.16÷0.85 ^r	8÷31 ^c	Mietelski i inni 1993
Torf	Podhale	5.07 ^x	0.159 ^x	5 ^a	Boroń i inni, 2001
Gleba	Tatry	17 ^x			[Kubica i inni, 2002]
Osad denný	Zatoka Gdańska	10.3 ^x	NA	0	Suplińska i Grzybowska, 1998
Osad denný	Zatoka Gdańska	5.79 ^x	NA	0	Suplińska, 1992
Osad denný	Głębia Gdańska	5.40 ^x	0.17 ^{x,c}	0 ^c	Skwarzec i Bojanowski, 1992
Osad denný	Zatoka Pomorska	0.11÷1.44	0.003÷0.056	0 ^c	Bojanowski i inni, 1995

^a – średnia, ^r – zakres, ^x-maksimum, ^c- obliczone z opublikowanych w innej formie danych, NA – nie analizowano.

Oprócz IFJ prace nad oznaczaniem Pu w środowisku prowadzono w ostatnich latach w Polsce w czterech instytucjach: UMCS w Lublinie, IO PAN w Sopocie, UG w Gdańsku i CLOR w Warszawie. Stan prac nad plutonem w środowisku Polski na rok 1999 został przedstawiony przez autora w przeglądowym artykule [Mietelski, 2001a]. Zaobserwowane w omówionych tam pracach oraz w pracach prowadzonych w IFJ z udziałem autora, lecz wyłączonych z aktualnej rozprawy [Boroń i inni, 2001; Kubica i inni, 2002], aktywności izotopów Pu w próbkach gleby, ściółki leśnej i osadów dennych z Polski w zestawiono w tabeli 4.

Największą skumulowaną sumę opadu $^{239+240}\text{Pu}$, wynoszącą 314 Bq/m² stwierdzono w próbce osadu dennego z Bałtyku. [Suplińska, 1992]. Był to Pu pochodzący z opad globalnego, być może kumulowany w danym miejscu wraz z poziomym transportem osadów. W próbce lądowej wysoką wartość skumulowanej depozycji stwierdzono dla torfu z Podhala [Boroń i inni, 2001]. Wynosiła ono 114.5 Bq/m², z czego zaledwie 0.5 Bq/m² można było przypisać katastrofie czarnobylskiej. Jeszcze więcej plutonu znaleziono w wysokogórskich próbkach z Tatr. Skumulowana depozycja $^{239+240}\text{Pu}$ praktycznie tylko z globalnego opadu sięga 170 Bq/m² dla próbki gleby pobranej w pobliżu wypływu Białki z Morskiego Oka lub 150 Bq/m² dla Dolinki za Mnichem [Kubica i inni, 2002]. W okolicach Lublina opad czarnobylski stanowi średnio 15% całkowitej aktywności Pu, sięgającej 60 Bq/m² [Komosa, 1999a]. Dane te stanowią poziom odniesienia dla przedstawianych w dalszych częściach pracy wyników z Polski Północno-Wschodniej, przede wszystkim z Puszczy Augustowskiej.

I. 3. Ameryk i cięższe transuranowce

Ameryk jest transuranowcem o liczbie atomowej $Z=95$, najtrwalszy jego izotop o liczbie masowej $A=243$ ma czas połowicznego zaniku równy 7400 lat.

W środowisku przyrodniczym obecne są skażenia izotopem ^{241}Am (o czasie połowicznego zaniku $T_{1/2}=432$ lata). ^{241}Am rozpada się poprzez rozpad alfa emitując cząstki alfa o energiach bliskich 5.5 MeV. Powstające jądra ^{237}Np są wzbudzone i z prawdopodobieństwem 35.9 % emitują kwanty promieniowania gamma o energii 59.5 keV. ^{237}Np ma czas połowicznego zaniku ponad $2 \cdot 10^6$ lat, co powoduje, że jego aktywność jest bardzo niska. Ciąg kolejnych rozpadów jąder atomowych, pochodnych ^{237}Np tworzy tzw. szereg neptunowy, występujący niegdyś naturalnie na Ziemi.

Właściwości chemiczne ameryku są bardzo zbliżone do pierwiastków ziem rzadkich (lantanowce). Ameryk występuje tylko na III stopniu utleniania.

Podobnie jak pluton, ameryk jest toksycznym ciężkim metalem i jest silnie radiotoksyczny. Jego metabolizm w ciele człowieka nie różni się znacznie od metabolizmu Pu. W raporcie ICRP No. 19 [ICRP, 1972] przyjmowano, że po wchłonięciu do krwioobrotu 45% Am gromadzi się w szkielecie (z czasem biologicznego połowicznego zaniku $T_{b\ 1/2} = 100$ lat), a drugie 45% Am w wątrobie (z $T_{b\ 1/2}=40$ lat). Skorygowano później te dane [ICRP, 1986], odpowiednio przyjmując $T_{b\ 1/2}$ równe odpowiednio 50 i 20 lat dla szkieletu i wątroby. W tym raporcie przyjęto proporcje podziału ameryku pomiędzy wątrobę i szkielet taką jak dla plutonu, a więc 50% w kościach, 30% we wątrobie. Takie same dane o metabolizmie przyjmuje się dla kiuru. Znacznie krótszy czas biologicznego połowicznego zaniku, wynoszący 2 lata dla ameryku w wątrobie, wynika z badań materiałów sekcyjnych opublikowanych w pracy [McInroy i inni, 1989].

Chemizm ameryku w przyrodzie nie odbiega znacznie od zachowania się Pu, będąc praktycznie identycznym z właściwościami Pu^{+3} [Choppin, 1988],

^{241}Am wykorzystywany jest w czujnikach dymu. Często stosowany jest też jako wygodne źródło niskoenergetycznego promieniowania gamma, np. w metodzie fluorescencji rengenowskiej [Eisenbud, 1987].

^{241}Am powstaje w reaktorze atomowym jako produkt aktywacji, w sekwencji reakcji wychwytu neutronu i rozpadów β^- . W uwolnieniach reaktorowych ^{241}Am pojawia się w pewnej proporcji do izotopów plutonu zależnej od rodzaju reaktora i jego czasu eksploatacji. W pozostałościach po opadzie czarnobylskim (kilka lat po depozycji) ^{241}Am pochodzi zarówno z bezpośredniej depozycji jak i późniejszego wzrostu aktywności w wyniku rozpadu ^{241}Pu . ^{241}Am powstały z rozpadu ^{241}Pu jest też obecny w opadzie promieniotwórczym po wybuchu jądrowym. Jego aktywność w wypalonym paliwie lub w opadzie promieniotwórczym początkowo, przez kilkadziesiąt lat, rośnie w czasie. W pozostałości opadu globalnego obecna aktywność ^{241}Am stanowi około 1/3 aktywności $^{239+240}\text{Pu}$. Po praktycznie całkowitym rozpadnięciu się ^{241}Pu , a więc po 70 latach od wystąpienia opadu (czyli ok. 2035 roku) osiągnie blisko 43% aktywności $^{239+240}\text{Pu}$, czyli 25 Bq/m². Natomiast dla opadu czarnobylskiego, po całkowitym rozpadnięciu się ^{241}Pu aktywność ^{241}Am ma około trójrotnie przewyższać aktywność $^{239+240}\text{Pu}$ [Mironov i inni, 2001].

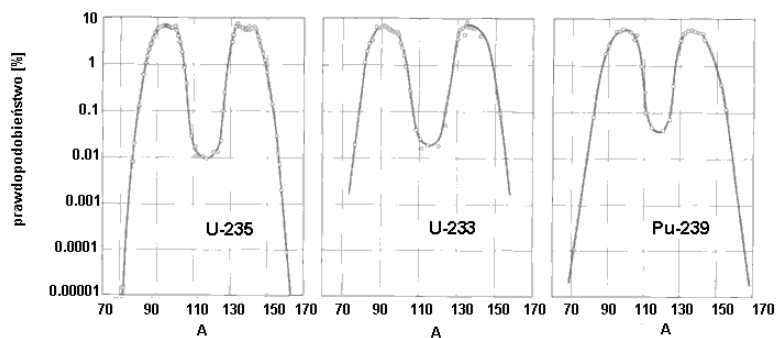
Zarówno w opadzie po wybuchach jądrowych jak i w opadzie czarnobylskim stwierdzano obecność również śladowych ilości cięższych transuranowców. Przede wszystkim znajdowano izotopy kiuru ($Z=96$): ^{242}Cm , ^{243}Cm , ^{244}Cm [Eisenbud, 1987]. Ciężkie transaktynowce jak kiur czy berkel (Bk, $Z=97$) powstają w wybuchach jądrowych, zwłaszcza dużej mocy, jednakże ilości tych jąder są względnie małe i w opadzie globalnym były praktycznie niewykrywalne poza miejscami eksplozji. Natomiast bezpośrednio po katastrofie czarnobylskiej w „gorących cząstkach typu paliwowego” obserwowano [Broda i inni, 1989] stosunkowo duże aktywności ^{242}Cm ($T_{1/2}=160$ dni) oraz ślady ^{244}Cm ($T_{1/2}= 30$ lat) i ^{243}Cm ($T_{1/2}=18$ lat). Kiur i ameryk wykazują daleko idące podobieństwo właściwości chemicznych. W raporcie [ICRP, 1986] przyjmuje się, że ciężkie transaktynowce gromadzą się nieznacznie chętniej w kościach niż w wątrobie, w porównaniu do ameryku czy plutonu.

Bardzo zbliżone chemiczne właściwości ameryku i kiuru powodują, że w środowisku przyrodniczym zazwyczaj nie ulegają separacji, a w analizach radiochemicznych na ogół znajdują się w jednej frakcji.

I.3. Właściwości fizykochemiczne ^{90}Sr

^{90}Sr to czysto beta promieniotwórczy izotop strontu o $T_{1/2}=28.6$ lat. Rozpada się emitując elektrony o energii maksymalnej 540 keV (średniej energii równej 195.8 keV) tworząc również czysto beta promieniotwórczy izotop ^{90}Y o $T_{1/2}=64.1$ godziny. ^{90}Y emituje elektrony o energii maksymalnej 2.228 MeV (a średniej 934.8 keV), a rozpadając się tworzy stabilny ^{90}Zr .

^{90}Sr jest produktem rozszczepienia, na bimodalnej („dwugarbnej”) krzywej rozkładu prawdopodobieństwa mas jąder powstałych w rozszczepieniu ^{235}U lub ^{239}Pu (rys. 3) znajduje się w pobliżu lewego maksimum, w przeciwieństwie do ^{137}Cs znajdującego się w pobliżu prawego maksimum. ^{90}Sr pojawia się więc zarówno w wybuchach jądrowych jak i jest wytwarzany w reaktorach jądrowych. Jego właściwości środowiskowe i dozymetryczne były przedmiotem intensywnych badań w latach sześćdziesiątych XX w. [Liniecki, 1966], gdyż był uznawany jako drugie, (po ^{14}C , a więc przed ^{137}Cs) zagrożenie z dozymetrycznego punktu widzenia po testach z bronią jądrową. Jego aktywność w opadzie globalnym wynosiła 62.5% aktywności ^{137}Cs [UNSCEAR, 1977]. ^{90}Sr i ^{137}Cs mają porównywalne czasy połowicznego zaniku (odpowiednio 28.5 i 30 lat), jednak dłuższy czas biologicznego półtrwania w organizmie ^{90}Sr , jego gromadzenie się w kościach oraz emisja dwóch cząstek beta o średnio znacznie wyższej energii niż pojedynczej cząstki beta i kwantu gamma w rozpadzie ^{137}Cs ($^{137}\text{Cs}\rightarrow^{137\text{m}}\text{Ba}$; $^{137\text{m}}\text{Ba}\rightarrow^{137}\text{Ba}+\gamma$) jak również wysoka wartość współczynnika wchłonięcia drogą pokarmową (f_1) równego 0.3 dla dorosłego i 0.6 dla niemowlęcia [Euratom, 1996] powoduje, że przy porównywalnych aktywnościach ^{90}Sr i ^{137}Cs , dawki od wchłoniętego ^{90}Sr są większe niż od ^{137}Cs . Skuteczna dawka obciążająca dla osoby dorosłej po jednorazowym wchłonięciu drogą pokarmową 1 Bq ^{90}Sr wynosi $2.8\cdot 10^{-8}$ Sv, a dla niemowlęcia $2.3\cdot 10^{-7}$ Sv [Euratom, 1996]. Dla ^{137}Cs wartości te są odpowiednio równe $1.3\cdot 10^{-8}$ Sv i $2.1\cdot 10^{-8}$ Sv. Różnica zwłaszcza jest widoczna dla niemowląt z racji odmiennej gospodarki wapniem w organizmie w fazie wzrostu i później, w życiu dorosłym [Liniecki, 1966]. Wapń jest chemicznym analogiem strontu, co powoduje, że wiele organizmów może intensywnie pobierać stront z otoczenia zwłaszcza w warunkach środowiskowego niedoboru wapnia.



Rys. 3. Rozkłady prawdopodobieństwa mas jąder powstałych w rozszczepieniu ^{235}U , ^{233}U i ^{239}Pu [Eisenbud, 1987].

Po katastrofie czarnobylskiej nie powstało dużo prac dotyczących ^{90}Sr , gdyż w krajach zachodnioeuropejskich był on deponowany na poziomie 1/50 aktywności ^{137}Cs [Wilken i Diehl, 1987]. Odmienne, w pobliżu reaktora depozycje ^{90}Sr i ^{137}Cs bywały porównywalne [IAEA, 1991]. Różnica proporcji wynika z różnic lotności ich związków, i wynikających stąd różnic w transporcie powietrznym izotopów tych pierwiastków. Izotopy strontu (^{90}Sr i krótkożytyowy ^{89}Sr) znalazły się w powietrzu w wyniku mechanicznego rozzerwania rdzenia reaktora w momencie jego wybuchu chemicznego, związane były głównie z makroskopowymi fragmentami paliwa oraz dużymi aerozolami (o średnicach rzędu kilkuset μm) opadającymi w niewielkiej odległości od źródła emisji. Natomiast cez był w stanie efektywnie odparowywać z płonącego reaktora, później kondensował w powietrzu lub osiadał na powierzchni drobnych aerozoli, przez co mógł utrzymywać się w powietrzu znacznie dłużej i dolatywać na duże odległości od Czarnobyla. Pojedyncze pomiary ^{90}Sr w Polsce w

czasie trwania katastrofy czarnobylskiej wykazały jego niskie aktywności [Broda i inni, 1986], dlatego w ocenie dawki dla mieszkańców Polski [Żarnowiecki, 1988] jego udział został pominięty. Zakładając średnią wartość stosunku aktywności $^{137}\text{Cs}/^{90}\text{Sr}$ w chmurze czarnobylskiej nad Polską jako większą niż 50 można było ocenić maksymalną depozycję ^{90}Sr w Polsce jako nie przekraczającą 1 kBq/m^2 (przy depozycji rzędu 50 kBq/m^2 dla ^{137}Cs na Śląsku Opolskim), przy średniej wartości na poziomie nie przekraczającym 100 Bq/m^2 . Depozycja ^{90}Sr po atmosferycznych testach broni jądrowej, w trakcie których wytworzono $40 \cdot 10^{16} \text{ Bq } ^{90}\text{Sr}$ [UNSCEAR, 1982], wyniosła średnio 3.2 kBq/m^2 , z czego w roku 1986 pozostawało około 1.5 kBq/m^2 . Chemiczne podobieństwo Sr i Ca powoduje, że izotopy Sr są mobilne w środowisku, nie ulegają silnemu kompleksowaniu w rozkładającej się materii organicznej ani sorpcji na minerałach ilastych tak jak Pu, Am czy Cs. Dlatego rekonstrukcja *ex-post* opadu ^{90}Sr jest utrudniona – jest on rozproszony w wielu komponentach środowiska, w szczególności znajduje się w roślinach i zwierzętach żyjących na danym terenie. Częściowo może ulegać migracji w głąb profilu glebowego. W ocenie rekonstruowanego opadu wykorzystuje się tzw. współczynniki koncentracji ^{90}Sr do roślin i zwierząt, zdefiniowane w następnym podrozdziale. Danych o większym opadzie ^{90}Sr na danym terenie mogą dostarczyć porównania aktywności tego izotopu obserwowanej w takich samych organizmach żyjących w podobnych warunkach środowiskowych na różnych terenach.

I. 5. Przenikanie w środowisku substancji radioaktywnych do organizmów żywych

I.5.1. Współczynniki przenikania i koncentracji

Badaniem obiegu pierwiastków promieniotwórczych w środowisku zajmuje się radioekologia. Łączy ona w sobie elementy dziedzin pozornie tak odległych jak ekologia, chemia czy też dozymetria. W badaniach wykorzystuje metody pomiarowe fizyki i chemii jądrowej, a przede wszystkim metody spektroskopowe i radiochemiczne.

Przenikanie pierwiastków promieniotwórczych pomiędzy dwoma elementami ekosystemu (np. z gleby do rośliny czy z gleby - poprzez rośliny – do zwierząt) próbuje się opisać ilościowo wprowadzając pojęcie współczynnika przenikania oznaczanego TF (ang. *transfer factor*). Jeśli, dla ustalenia uwagi przyjmiemy, że rozważamy przenikanie danego radionuklidu z gleby do rośliny to odpowiedni TF zdefiniowany będzie jako stosunek stężenia aktywności (inaczej: zawartość) A_2 danego radionuklidu w roślinie (ogólnie: w tym elemencie ekosystemu, do którego przenika radionuklid) względem stężenia aktywności A_1 (zawartości) tego radionuklidu w glebie (ogólnie: w tym elemencie ekosystemu, z którego przenika radionuklid):

$$TF = \frac{A_2}{A_1} \quad \{8\}$$

Jeśli oba stężenia aktywności wyrażamy w Bq/kg suchej masy, to TF jest wielkością bezwymiarową.

Czasem korzystniej, lub wygodniej, jest rozważać przenikanie radionuklidów do roślin lub zwierząt odwołując się do aktywności powierzchniowej danego radionuklidu (w danej warstwie gleby lub skumulowanej w całym profilu glebowym). Wówczas wprowadza się pojęcie współczynnika koncentracji AC (ang. *aggregation coefficient*, lub *aggregated transfer coefficient*). Definiuje się go jako stosunek stężenia aktywności danego radionuklidu w badanym elemencie ekosystemu A_2 do aktywności powierzchniowej A_p wyrażonej w Bq/m^2 .

$$AC = \frac{A_2}{A_p} \quad \{9\}$$

Jednostką AC jest $[\text{m}^2/\text{kg}]$.

Opis przenikania radionuklidów z wykorzystaniem pojęć współczynników przenikania (TF) lub koncentracji (AC) napotyka na uzasadnioną krytykę. Podczas gdy liczniki obu wyrażeń są dobrze zdefiniowane problemy pojawiają się, gdy głębiej zastanowić się nad ich mianownikami. Wyobraźmy sobie sytuację, gdy w badanej glebie pojawiłby się (np. naniiesiony przez wylew rzeki) piasek zawierający monocyty. Aktywność toru gleby by wzrosła, natomiast z racji trudnej rozpuszczalności monocyty najprawdopodobniej aktywność w roślinach nie uległaby zmianie. Zmniejszyłyby się natomiast obliczane wartości obu współczynników dla toru. Analogiczna sytuacja może wystąpić, gdy

antropogeniczne radionuklidy z opadu promieniotwórczego są silnie zaadsorbowane na powierzchniach ziaren mineralnych lub dostarczone w „gorących cząstkach” o postaci trudno rozpuszczalnych spieków. Aby usunąć tą trudność czasami uwzględnia się w mianowniku wzorów {8} i {9} tylko aktywność „biodostępną”, tj. przede wszystkim związaną z roztworem glebowym i wymywalną (wymywalną) za pomocą roztworów wodnych o parametrach spotykanych w środowisku. Pojawiają się wątpliwości – wymywalne w jakich warunkach itp. To podejście komplikuje stronę pomiarową i zaciera początkową jednoznaczność pojęć. Modyfikacja definicji TF i AC odnosząca się do frakcji wymiennej nie usuwa niestety wszystkich wątpliwości. Otóż w mianowniku wzorów {8} i {9} powinna znaleźć się tylko aktywność zawarta w warstwie gleby, z której dany organizm ma szansę czerpać radionuklidy. Wyodrębnienie tej warstwy jest trudne, a czasem wręcz niemożliwe. Wszystkie te trudności powodują, że pojęcia „współczynnika przenikania” czy też „współczynnika koncentracji” tracą swoją uniwersalność i mają sens tylko, o ile jasno jest określony sposób ich obliczania.

Dla upraw zagadnienie przenikania radionuklidów do roślin, zwłaszcza ^{137}Cs jest dosyć szczegółowo zbadane [IAEA-IUR, 1994]. Dla upraw rolnych A_1 w wzorze {8} jest średnią aktywnością w oranej warstwie glebie, np. w pierwszych 10 cm gleby [IAEA-IUR, 1994]. Na terenach tzw. semi-naturalnych (lasy, wrzosowiska, mokradła, tundra itp.) stężenia sztucznych radionuklidów nie są uśredniane w żaden sposób. Dla różnych roślin uprawnych wartości współczynników przenikania (TF) dla ^{90}Sr mieszczą się [IAEA-IUR, 1994] w granicach od $2 \cdot 10^{-2}$ (np. bulwa ziemniaka, gleba torfowa, pH=4) do 3.0 (np. rośliny zielone, na piaskach, pH=5). Dla ^{137}Cs są na ogół o rząd wielkości niższe [IAEA-IUR, 1994]. Dla plutonu wartości te na terenach uprawowych mieszczą się w granicach [IAEA-IUR, 1994] od $8.6 \cdot 10^{-6}$ (ziarna zbóż) do $4.4 \cdot 10^{-3}$ (korzeń marchwi), a dla ameryku od $2.2 \cdot 10^{-5}$ (ziarna zbóż) do $1.2 \cdot 10^{-3}$ (trawy). Podobne wartości jak dla Am podano dla Cm. Wartości TF dla transuranowców nie odnoszą się do określonych warunków glebowych, a podany w cytowanej pracy zakres niepewności waha się od dwóch do sześciu (*sic!*) rzędów wielkości.

1.5.2. Rola mikroorganizmów

W ostatnich latach zwrócono szczególną uwagę na rolę mikroorganizmów w procesie przemieszczania się, akumulacji i remobilizacji radionuklidów w środowisku, a w szczególności w glebie. Obecny stan ogólny wiedzy na ten temat podsumowany został w przeglądowej pracy [Tamponet i inni, 2001]. Procesy biologiczne istotnie uzupełniają abiotyczne mechanizmy rządzące zachowaniem się radionuklidów w glebie. Do opisu zarówno biologicznych jak i abiotycznych procesów wykorzystuje się tzw. model przedziałów. Dzieli on glebę na elementy składowe. Dla opisu obu procesów kluczowym przedziałem jest roztwór glebowy – zawiera on rozpuszczone jonowe formy radionuklidów. Pomiedzy roztworem glebowym a tzw. formami wymiennymi istnieje dynamiczna równowaga. Radionuklidy mogą przenikać pomiędzy tymi dwoma przedziałami poprzez nietrwale adsorpcję i desorpcję na powierzchniach ziaren, mogą też być z tych przedziałów wyeliminowane poprzez trwale zaadsorbowanie na ziarnach mineralnych lub też poprzez wypłukanie do wód gruntowych. Kolejnym istotnym przedziałem, z którego radionuklidy mogą przenikać do roztworu glebowego są cząstki na powierzchni których (lub – w środku których) radionuklidy dostają się do gleby – są one na ogół w glebie obcym materiałem. Radionuklidy w formach rozpuszczalnych dostają się też bezpośrednio do roztworu glebowego z powietrza wraz z opadem atmosferycznym. Uwzględniane biologiczne procesy to przede wszystkim pobór korzeniowy radionuklidów z roztworu glebowego, oraz ponowne dostawanie się ich do gleby wraz z cząstkami obumarłych roślin. Wchłanianie korzeniowe jest tak podstawowym procesem, że uwzględniają go modele nazywane abiotycznymi. Bardziej rozbudowane modele uwzględniają mikroorganizmy, które pojawiają się w roli swoistych buforów - dodatkowych przedziałów pomiędzy wszystkimi wymienionymi powyżej przedziałami. Dobitym przykładem mogą tu być grzyby biorące udział w mikoryzie, która bardzo istotnie modyfikuje pobór korzeniowy mikroelementów (a wśród nich także radionuklidów) przez rośliny wyższe.

Niektóre mikroorganizmy utrudniają ruchliwość radionuklidów [Tamponet i inni, 2001] poprzez procesy takie jak: bio-sorpcję (zatrzymywanie się jonów w błonach komórkowych) [Small i inni, 1999; He i inni, 2000; Texier i inni, 2000], bio-akumulację (zatrzymywanie się jonów we wnętrzach komórek) [Henrot, 1989; Avery, 1996] oraz redukcje jonów do form mniej

rozpuszczalnych i ich wytrącanie w postaci osadów [Tolley i inni, 1995]. Z drugiej strony inne mikroorganizmy mogą wpływać na wzrost ruchliwości radionuklidów [Tamponet i inni, 2001] poprzez np. utlenianie [Francis, 1994], wytwarzanie substancji kompleksujących [Francis, 1994] i uwalnianie radionuklidów w trakcie rozkładu szczątków organicznych.

Procesy te w odniesieniu do Pu zostały omówione w pracy [Francis, 2001]. W szczególności zwrócona tam uwagę na przenikanie Pu do grzybów (w hodowli laboratoryjnej) w formie cytrynianów i soli azotowych, charakteryzujących się trójrotnie wyższym współczynnikiem przenikania niż w przypadku trudno rozpuszczalnego tlenku plutonu.

1.5.4. Modele przenikania

Uwzględnienie czynnika mikrobiologicznego niesłychanie komplikuje ewentualne modele matematyczne próbujące opisać realistycznie obieg radionuklidów w środowisku. Mówiąc ogólnie, przy N wyróżnionych przedziałach i przy założeniu, że radionuklidy mogą przedostawać się pomiędzy dowolnymi dwoma przedziałami, przy minimalnie jednej stałej opisującej wymianę między przedziałami, otrzymuje się model $N(N-1)/2$ parametryczny. Dla prostego modelu abiotycznego, bez uwzględniania roli mikroorganizmów, wyróżnia się siedem przedziałów, a więc ewentualny uproszczony (bo zaniedbujący rolę mikroorganizmów) model zawiera 21 parametrów. Ta liczba może być odbierana jako niepokojąco duża.

Sukcesy w opisie wchłaniania cezu radioaktywnego przez rośliny odnoszą ostatnio inne modele określane mianem mechanistycznych, zależne od bardzo małej liczby parametrów empirycznych, w szczególności jednego, tzw. współczynnika rozdziału [Absalom i inni 1999 i 2001]. Wykorzystują one zależność tempa wertykalnej migracji radionuklidów w glebie od własności sorpcyjnych gleby. Jeśli radionuklidy są obecne w glebie jedynie w śladowych ilościach to ich sorpcję w glebie opisuje się w oparciu o współczynnik rozdziału K_d , zdefiniowanego następującym elementarnym wzorem [Bunzl i Schimmack, 1991]:

$$K_d = \frac{C_g}{C_r} \quad \{10\}$$

gdzie: C_g – stężenie (aktywność) radionuklidu w 1g suchej gleby, C_r stężenie (aktywność) radionuklidu w 1cm³ roztworu glebowego).

Przykładowo, w glebach organicznych, najbardziej zbliżonych do środowisk leśnych, dla ¹³⁷Cs K_d przyjmuje średnio wartość [IAEA-IUR,1994] $2.7 \cdot 10^2$ (zakres zmienności od 1.2 do $3.6 \cdot 10^5$), dla ⁹⁰Sr średnia to $1.5 \cdot 10^2$ (zakres zmienności od 4.1 do $5.4 \cdot 10^3$), dla Pu $1.8 \cdot 10^3$ (zakres od 10 do $3.3 \cdot 10^5$), dla Am $1.1 \cdot 10^5$ (zakres od $3.6 \cdot 10^3$ do $3.3 \cdot 10^6$).

Obecnie próbuje się wykorzystać takie modele do opisu obiegu nie tylko ¹³⁷Cs ale i ⁹⁰Sr [Casadesus i inni, 2001]. Jednak wydaje się, że stopień rozwoju modeli obiegu ¹³⁷Cs i ⁹⁰Sr ciągle faza doskonalenia. Dla innych sztucznych radionuklidów, takich jak przykładowo izotopy Pu i Am konstruowane modele są w jeszcze bardziej początkowej fazie. Na obecnym etapie poznania dominuje jedynie próba uchwycenia jakościowo zachodzących zjawisk rządzących obiegiem tych radionuklidów.

II. Wybrane spektrometryczne metody pomiarowe stosowane w badaniach radioaktywności środowiska

II. 1. Spektrometria i promieniowanie przenikliwe.

Celem analizy spektralnej każdego rodzaju promieniowania jest uzyskanie informacji o rozkładzie natężenia promieniowania w funkcji jego energii, częstotliwości, długości fali lub innej wielkości fizycznej charakteryzującej je. Bez wątpienia, za prekursora badań spektrometrycznych należy uznać I. Newtona [Newton, 1704], który jako pierwszy uzyskał widmo światła białego. Właściwymi odkrywcami spektrometrii optycznej byli w XIX wieku G. Kirchhoff i K. Bunsen [Kirchhoff i Bunsen, 1860] oraz J. Fraunhofer.

Pierwszym narzędziem służącym do wykrywania promieniowania przenikliwego, zastosowanym zarówno przez H. Becquerela [Becquerel, 1896] jak i W. C. Roentgena [Roentgen, 1896], była klisza fotograficzna. M. Skłodowska-Curie wraz z P. Curie stosowali najchętniej elektrometr [Skłodowska-Curie, 1898]. Dziś może zdumiewać, jak wiele wiedzy o promieniowaniu przenikliwym i jego źródłach uzyskano stosując te elementarne narzędzia [Rutherford, 1899]. Wnet, bo już w 1906 w badaniach promieniotwórczości zastosowano ekrany scyntylicyjne (W. Crooks, E. Rutherford) oraz elektromagnetyczne spektrometry masowe [Britannica, 1991]. Ich prekursorem był w 1913 J.J. Thomson, a konstrukcje dojrzałe stworzyli w 1918 r. F.W. Aston i A.J. Dempster [Aston, 1919]. W latach dwudziestych XX w. wynaleziono i zastosowano liczniki gazowe (Geiger i Müller, 1928), a z ekranem scyntylicyjnym sprzęgnięto fotopowielacz tworząc licznik scyntylicyjny. W badaniach wysokoenergetycznych cząstek stosowano komory mgłowe (Wilson) a później komory pęcherzykowe (D. Glaser) oraz komory wielodrutowe (G. Charpak). Dla badania niskoenergetycznego promieniowania beta z rozpadu trytu zastosowano (1956) licznik scyntylicyjny zawierający ciekły scyntylator mieszany ze preparatem będącym źródłem promieniowania [Britannica, 1991]. W latach sześćdziesiątych XX w. jako detektor promieniowania gamma zastosowano diodę półprzewodnikową. Rozwój elektroniki umożliwił konstruowanie spektrometrów promieniowania przenikliwego wykorzystujących gazowe liczniki proporcjonalne, liczniki scyntylicyjne lub diody półprzewodnikowe. Spektrometry te początkowo były jedno-, dwu-, lub trój-kanalowe a później wielokanałowe, np. 256, 1024, 4096, 16384 itd.

Badania śladowych stężeń substancji radioaktywnych w środowisku umożliwia niskotłowa spektrometria promieniowania alfa, beta i gamma. Uzupełniającą techniką, stosowaną w odniesieniu do substancji o długim czasie połowicznego zaniku, jest spektrometria masowa. Tym technikom badań poświęcony jest niniejszy rozdział. Metody spektrometryczne wspomagane są na ogół przez metody radiochemiczne służące wydzieleniu szukanych substancji [Myasoedov i Pavlotskaya, 1989].

II.2. Spektrometria promieniowania alfa.

II.2.1. Promieniowanie alfa

Rozpad alfa to rozpad jądra atomowego, któremu towarzyszy emisja cząstki alfa – jądra ${}^4\text{He}$. Istotą rozpadu alfa jest pokonanie przez cząstkę alfa na drodze efektu tunelowego bariery potencjału otaczającej jądro. Dokonać tego może jedynie cząstka już uformowana wewnątrz jądra i znajdująca się na odpowiednio wysokim poziomie energetycznym. Jej energia po opuszczeniu jądra odpowiada energii tego poziomu, a więc jest ściśle określona – skwantowana. Widmo cząstek alfa jest widmem liniowym. Energia cząstek alfa pochodzących z rozpadu jąder atomowych obecnych w środowisku zawarta jest w przedziale od 1.8 MeV (${}^{144}\text{Nd}$) do 8.8 MeV (${}^{212}\text{Pb}$). Najbardziej interesujący jest zakres energii od 4.0 MeV (${}^{232}\text{Th}$) do 5.7 MeV (${}^{224}\text{Ra}$), w którym mieszczą się energie emitowanych cząstek alfa izotopów uranu, toru, plutonu, ameryku oraz radu.

Rozpad alfa to najbardziej rozpowszechniony przypadek tzw. rozpadu klastrowego, a więc rozpadu polegającego na emisji kompletnego jądra atomowego z innego jądra. Innymi dotychczas zaobserwowanymi rodzajami rozpadu klastrowego jest emisja jąder ${}^{14}\text{C}$ z ${}^{227}\text{Ac}$ [Rose i Jones, 1984] oraz ${}^{24}\text{Ne}$ z jąder ${}^{232}\text{Th}$ [Alexandrov i inni, 1985]. Prawdopodobieństwo emisji innych jąder niż jądra ${}^4\text{He}$ jest na ogół bardzo niskie, jeśli nie liczyć rozszczepienia jądra atomowego, które może być traktowane jako inny graniczny przypadek rodzaj rozpadu klastrowego [Ardisson, 1996], tyle że tu

z początkowego jądra emitowane jest jądro ciężkie, zawierające prawie połowę liczby jego nukleonów.

Pomimo stosunkowo dużej energii kinetycznej niesionej przez każdą cząstkę promieniowanie alfa charakteryzuje się małą przenikliwością spowodowaną bardzo efektywnym przekazem otoczeniu tej energii, a więc wysoką wartością liniowego przekazu energii – LET(ang. *Linear Energy Transfer*). Promieniowanie alfa ma charakter jednoznacznie zasięgowy, jego zasięg X w materii wyraża się wzorem [Strzałkowski, 1979]:

$$X = \int_0^{E_{pocz}} \left(\frac{dE}{dx} \right)^{-1} dE \quad \{11\}$$

gdzie: E_{pocz} – początkowa energia cząstek alfa, dE/dx – straty energii na jednostkę drogi (LET).

Spektrometria promieniowania alfa jest wysokoczułą i selektywną metodą detekcji izotopów uranu, toru, plutonu, radu, polonu, ameryku, kiuru i niektórych pierwiastków ziem rzadkich. Ze względu na małą przenikliwość promieniowania alfa niezbędny dla precyzyjnych pomiarów warunków niskiego tła osiąga się względnie łatwo stosując odpowiednie materiały konstrukcyjne detektora, podkładki źródła i komory pomiarowej, charakteryzujące się niskimi stężeniami substancji alfa-promieniotwórczych. W szczególności unika się stopów aluminium zawierających zazwyczaj domieszki uranu na poziomie 1 ppm (~12 Bq/kg). Względnie łatwo można osiągać częstość zliczeń dla obszaru danej linii widmowej w tle równą 10^{-5} Hz, tj. mniej niż jedno zliczenie na dzień.

II.2.2. Metody radiochemiczne

Ze względu na małą przenikliwość promieniowania alfa stosowanie tej metody wymaga wydzielenia poszukiwanego izotopu, lub grupy izotopów, metodami radiochemicznymi z materiału matrycowego i przygotowanie zeń źródła o gęstości powierzchniowej mniejszej od 0.1 mg/cm^2 . Tylko źródła o przynajmniej tak małej gęstości powierzchniowej gwarantują uzyskanie widm o należytej rozdzielczości. Wydajność wydzielenia kontroluje się ilościowo dodając znacznik izotopowy. Przykłady stosowanych znaczników izotopowych przedstawiono w tabeli 5. Dla osiągnięcia oceny całkowitej aktywności danego radionuklidu zawartego w próbce pożądane jest pełne rozpuszczenie materiału matrycy. Dla niektórych matryc stanowi to podstawową trudność.

Tabela 5. Przykłady znaczników izotopowych stosowanych dla oznaczeń wybranych izotopów

Oznaczany izotop	Znacznik
^{238}U , ^{234}U , ^{235}U	^{232}U
^{239}Pu , ^{238}Pu	^{236}Pu , ^{242}Pu
^{232}Th , ^{230}Th , ^{228}Th	^{229}Th
^{226}Ra	$^{133}\text{Ba}(\gamma)$
^{147}Sm , ^{144}Nd , ...	^{148}Gd , $^{155}\text{Eu}(\gamma)$, $^{154}\text{Eu}(\gamma)$, $^{152}\text{Eu}(\gamma)$
^{241}Am , ^{244}Cm	^{243}Am

Oznaczenie: γ - Pomiar wydajności (odzysku znacznika) na spektrometrze promieniowania gamma

W każdej metodzie radiochemicznej służącej do oznaczenia stężeń substancji alfa-promieniotwórczych można wyróżnić trzy etapy:

- Rozpuszczenie (mineralizację) lub wymycie próbki,
- Wydzielenie i zateżenie poszukiwanej substancji (izotopu, grupy izotopów),
- Przygotowanie źródła spektrometrycznego.

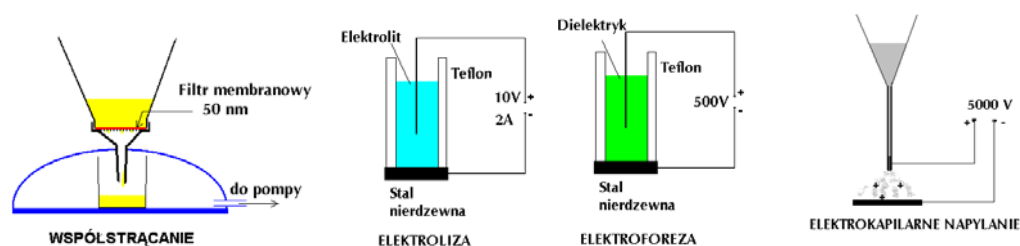
Metoda mineralizacji musi być dobrana do danego materiału matrycowego. W procedurze mineralizacji, przy oznaczeniach całkowitej aktywności danego izotopu alfa promieniotwórczego musi istnieć pewien etap, w którym rozpuszczanie się powiodło. Istnienie takiego etapu pozwala uzyskać pewność co do dokładnego wymieszania dodanego na początku mineralizacji znacznika izotopowego z rozpuszczanym materiałem. Zazwyczaj stosuje się mineralizację suchą (wstępne spalenie próbki

w kontrolowanej, dobranej dla danego izotopu temperaturze), a po niej mineralizację moką z wykorzystaniem stężonych, gorących kwasów (HF, HNO₃, HCl, HClO₄) lub zasad (NaOH, KOH). Często stosuje się dodatkowo nadtlenek wodoru (H₂O₂). Dla małych próbek stosuje się też spiekanie z solami metali alkalicznych. Na ogół, choć nie zawsze, unika się stosowania H₂SO₄ ze względu na jego małą lotność i trudności z późniejszym rozpuszczaniem wielu soli siarczanowych. Najlepsze rezultaty uzyskuje się w mineralizatorach mikrofalowych stosując podwyższone ciśnienie. Zamiast pełnej mineralizacji stosuje się czasem jedynie wmywanie przeprowadzone w obecności znacznika w określonych warunkach (np. za pomocą gorącego 6 M HCl). Dla niektórych izotopów sztucznych metoda ta prowadzi do wyników równoważnych z otrzymanymi przy stosowaniu pełnej mineralizacji [Skwarzec 1995, 1997; Komosa, 1999]. Jest to możliwe, jeśli poszukiwany izotop nie jest zaokludowany w nierozpuszczalnej matrycy lub interesuje nas wyłącznie aktywność wymywalna, czy biodostępna. Dla wydzielenia szukanej substancji stosuje się metody chemii analitycznej takie jak chromatografię jonowymienną, ekstrakcje i re-ekstrakcje w układach ciecz-ciecz i ciecz-ciało stałe, współstrącanie oraz metody termochemiczne. Procedury stosowane w niniejszej pracy zawierały pełną mineralizację i na ogół wydzielenie poszukiwanych izotopów za pomocą chromatografii jonowymiennej (Aneks 2).

II.2.3. Otrzymywanie źródeł

Cienkie źródła alfa-spektrometryczne uzyskuje się metodami, które można podzielić na trzy grupy, (rys. 4):

- chemicznymi, takimi jak współstrącanie z mikrogramowymi ilościami substancji wbudowującymi w swoją sieć krystaliczną oznaczany izotop lub selektywna sorpcja na materiale podkładowej,
- elektrochemicznymi (elektroliza, elektroforeza, spontaniczna depozycja),
- fizycznymi (elektrokapilarne napylenie, odparowanie).



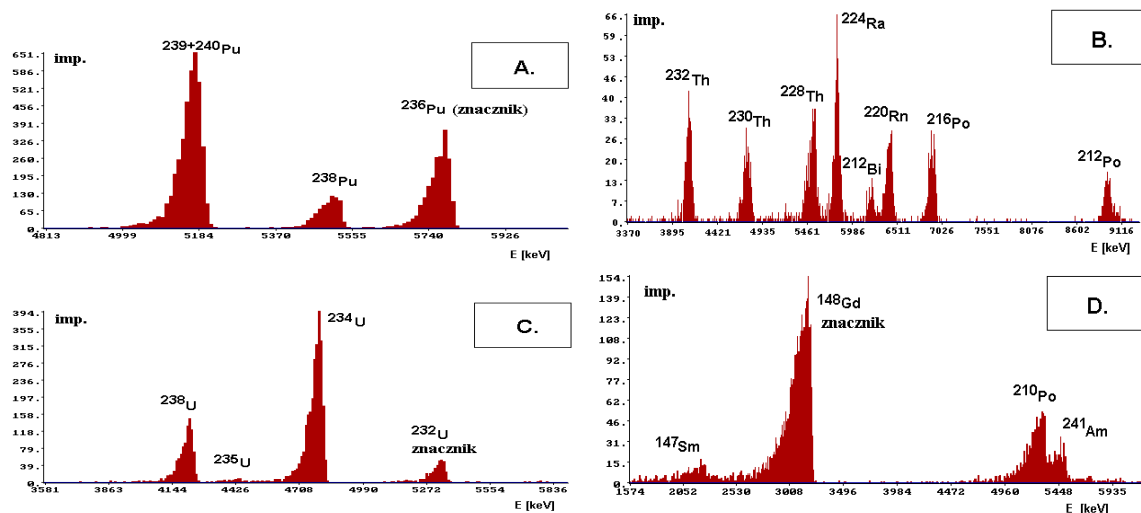
Rys. 4. Przykłady uproszczonych schematów uzyskiwania źródeł alfa-spektrometrycznych różnymi metodami.

Najczęściej chyba stosowaną metodą jest elektrolityczne osadzanie źródła. Jednak szerokie możliwości daje współstrącanie, przede wszystkim z NdF₃ [Sill, 1987]. Tą prostą metodą można otrzymać cienkie źródła spektrometryczne dla plutonu, toru, ameryku, kiuru i pierwiastków ziem rzadkich oraz dla uranu. W tym ostatnim przypadku konieczne jest zastosowanie czynnika redukującego jony U⁺⁶ do niższych stopni utlenienia. Na rys. 5 przedstawiono przykłady widm promieniowania alfa uzyskanych w IFJ tą metodą [Mietelski, Gaca i Olech, 2000]. Metodę współstrącania z NdF₃ (Aneks 2) stosowano w omówionych w całej pracy badaniach.

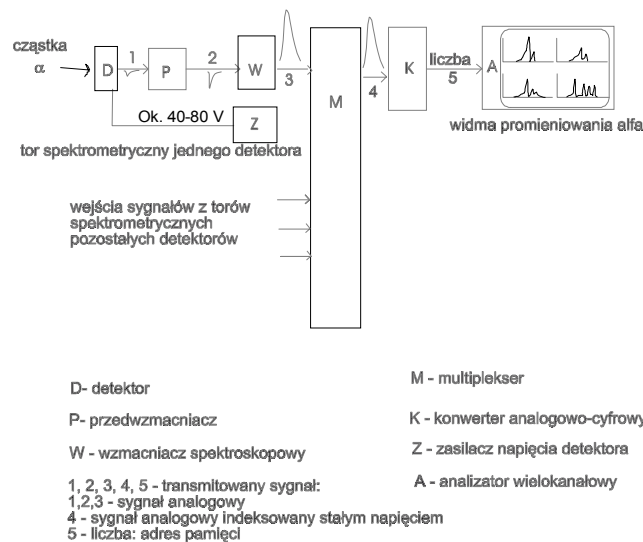
II.2.4. Aparatura pomiarowa

Detektorem w spektrometrze promieniowania alfa może być scyntylator (np. ZnS) z fotonowielaczem, komora jonizująca lub detektor półprzewodnikowy – dioda krzemowa z cienkim oknem wejściowym. Najczęściej wykorzystuje się spektrometr promieniowania alfa z krzemowym detektorem z wdryfowanymi lub implantowanymi domieszkami tworzącymi złącze p-n. Pierwsze z powyższych określa się skrótem SBSi (ang. *Surface Barrier Silicon*), drugie skrótem PIPS (*Passivated, Implanted Planar Silicon* – pasywowane implantowane detektory planarne - nazwa stosowana dla produktów firmy Canberra, firma Ortec stosuje na analogiczny produkt nazwę *Ruggedized detector*). Metoda implantowania domieszek jest nowsza i stosując ją otrzymuje się lepsze

parametry eksploatacyjne detektora, m.in. możliwa jest jego praca w obecności światła, jest bardziej stabilny chemicznie przez co możliwe jest np. czyszczenie powierzchni w przypadku kontaminacji.



Rys. 5. Przykłady widm promieniowania alfa uzyskanych metodą współstrącania z NdF_3 [Mietelski, Gaca i Olech, 2000] dla różnych frakcji tej samej próbki porostów z Antarktydy; A- frakcja zawierająca pluton, B - frakcja zawierająca tor (wraz z pochodnymi jego rozpadu), C - frakcja zawierająca uran, D - frakcja ziem rzadkich ze śladami ameryku i polonu.



Rys. 6. Schemat blokowy czterokomorowego spektrometru promieniowania alfa.

Z wyjątkiem pewnych szczególnych zastosowań, pomiar aktywności alfa odbywa się zawsze w próżni, jednak optymalną jest niska próżnia o ciśnieniu nie mniejszych niż 0.02 mbar. Śladowe ciśnienie jest korzystne, zmniejsza prawdopodobieństwo kontaminacji detektora przez jądra odrzutu. Dioda detektora spolaryzowana jest zaporowo napięciem rzędu kilkudziesięciu V, czynne złącze p-n ma głębokość $100 \div 300 \mu\text{m}$ i najczęściej powierzchnię rzędu kilkuset mm^2 . Sygnał z detektora, proporcjonalny do zdeponowanej w nim energii cząstki alfa, po wzmożeniu w przedwzmacniaczu i wzmacniaczu trafia (w wielokomorowym spektrometrze poprzez multiplexer) do konwertera analogowo-cyfrowego (np. Wilkinsona), gdzie porównywana jest jego amplituda względem wewnętrznego sygnału rosnącego schodkowo. Z chwilą osiągnięcia przez generowany sygnał zapamiętanej amplitudy sygnału z detektora numer „schodka” staje się adresem komórki pamięci, gdzie wykonuje się operacje „dodaj jeden”. W ten sposób w pamięci spektrometru gromadzone jest

w trakcie pomiaru widmo zarówno dla spektrometrów promieniowania alfa jak i opisanych dalej w pracy spektrometrów promieniowania beta (ciekłoscyntylnych) oraz spektrometrów promieniowania gamma.

Energię linii widmowej określa na podstawie przeprowadzonej wcześniej kalibracji energetycznej spektrometru. w tym celu wykonuje się szereg pomiarów widm różnych izotopów o znanych energiach linii widmowych tworząc tabelę energii i odpowiadających im numerów kanałów. Na płaszczyźnie energia - numer kanału przeprowadza się linię regresji – zasadniczo jest to linia prosta, jednak dokładniejszą kalibrację uzyskuje się dopasowując wykres wielomianu stopnia drugiego lub trzeciego. Analogicznie postępuje się dla spektrometrów promieniowania gamma.

We współczesnej spektrometrii promieniowania alfa stosuje się najczęściej wielokomorowe, zintegrowane spektrometry zawierające w jednej obudowie kilka oddzielnych torów spektrometrycznych i wykorzystujących jeden multipleksowany konwerter analogowo-cyfrowy. Blokowy schemat spektrometru promieniowania alfa przedstawiono na rys. 6. Przykładami takich spektrometrów mogą być Octete firmy ORTEC, Analyst firmy Canberra lub stosowany w prawie wszystkich badaniach prezentowanych w pracy spektrometr AlphaQuattro firmy Silena wyposażony w dwa detektory SBSi wytworzone w IFJ i dwa detektory PIPS produkcji firmy Canberra (Fot. 1.).

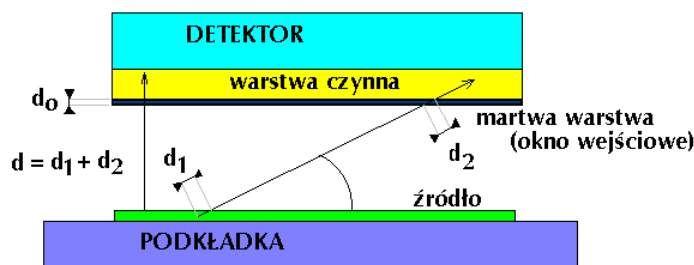


Fot.1. Czterokomorowy spektrometr promieniowania alfa Silena AlphaQuattro znajdujący się od 1995 w Laboratorium Badań Skażeń Radioaktywnych Środowiska IFJ.

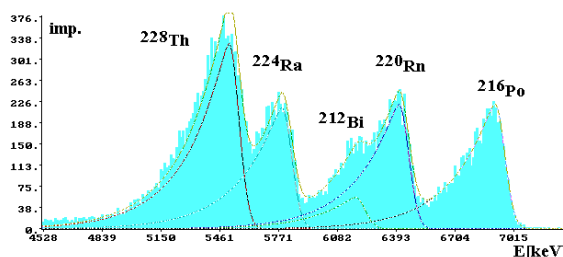
II.2.5. Widma promieniowania alfa

Parametrem charakteryzującym zdolność rozdzielczą spektrometru jest tzw. szerokość połówkowa określana anglojęzycznym akronimem FWHM (ang. „*full width at half of maximum* - pełna szerokość w połowie maksimum amplitudy). FWHM uzyskanych linii widmowych zależy od gęstości powierzchniowej źródła, ciśnienia resztkowego gazu, rodzaju detektora i od warunków geometrycznych pomiaru. Dla oddalonego cienkiego źródła uzyskuje się współcześnie szerokości połówkowe linii równe kilkunastu keV. Korzystne z punktu widzenia wydajności pomiaru bliskie wzajemne usytuowanie źródła i detektora wpływa niekorzystnie na zdolność rozdzielczą spektrometru, gdyż rejestrowane są wówczas (ze względnie dużym prawdopodobieństwem) również cząstki alfa emitowane ze źródła pod dużymi kątami. Cząstki te padają na detektor pod równie dużymi kątami (rys. 7). Dla emisji pod dużym kątem droga, jaką przebiegnie cząstka alfa w źródle (d_1) i w powierzchniowej, nieczynnej (martwej) warstwie detektora (d_2) zanim dotrze do czynnej objętości jest względnie duża, przez co straty energii wzdłuż niej stają się zauważalne. Długości dróg d_1 i d_2 zależą od kąta emisji i miejsca emisji w źródle o skończonej grubości. Zjawisko to prowadzi do wzrostu FWHM i pojawienia się silnej asymetrii w kształcie linii widmowych (rys. 5). .

Lewostronne zbocza linii widmowych mają przebieg zbliżony do funkcji wykładniczej, podczas gdy prawostronne pozostają gaussowskie. Może to prowadzić do częściowego nakładania się linii widmowych. Wówczas niezbędne staje się stosowanie specjalistycznego oprogramowania pozwalającego na matematyczne rozdzielanie częściowo pokrywających się linii widmowych. Problemy te znacznie zwiększają się przy wzroście gęstości powierzchniowej źródła. Przykład rozdzielanie częściowo pokrywających się linii widmowych z zastosowaniem programu ALF (opracowanego przez autora – zarys opisu w „Aneksie 1”) przedstawiono na rys. 8.



Rys. 7. Czynniki geometryczne wpływające na szerokość linii widmowych:



Rys. 8. Przykład możliwości numerycznego rozdzielania (metoda najmniejszych kwadratów) linii widmowych przy ich względnie dużej szerokości (próbka – frakcja Th z kości zwierzęcych, program ALF opracowany przez autora, opis w Aneksie 1).

II.2.6. Obliczanie aktywności

Aktywność A_p oznaczanego izotopu w próbce, w przypadku stosowania znacznika będącego również (jak oznaczany izotop) emiterym promieniowania alfa, wyznacza się korzystając ze wzoru:

$$A_p = A_w \frac{N_p}{N_w} \quad \{12\}$$

gdzie: A_w aktywność dodanego znacznika, N_p i N_w – odpowiednio liczba zarejestrowanych cząstek alfa (pole powierzchni linii widmowej po odjęciu tła) oznaczanego izotopu i znacznika.

Ocenę niepewności pomiaru uzyskuje się stosując metodę różniczki zupełnej.

W przypadku stosowania izotopu gamma promieniotwórczego jako znacznika (np. ^{133}Ba w oznaczeniach ^{226}Ra) aktywność A_p oznaczanego izotopu w próbce wyznacza się korzystając ze wzoru:

$$A_p = \frac{N_p}{t \Theta_\alpha Y} \quad \{13\}$$

gdzie: N_p - liczba zarejestrowanych cząstek alfa (pole powierzchni linii widmowej po odjęciu tła) dla oznaczonego izotopu, t - czas pomiaru, Y – wydajność radiochemiczna (odzysk) dla znacznika wyznaczony w niezależnym pomiarze gamma-spektrometrycznym, Θ_α - efektywność rejestracji cząstek alfa dla danej geometrii pomiaru.

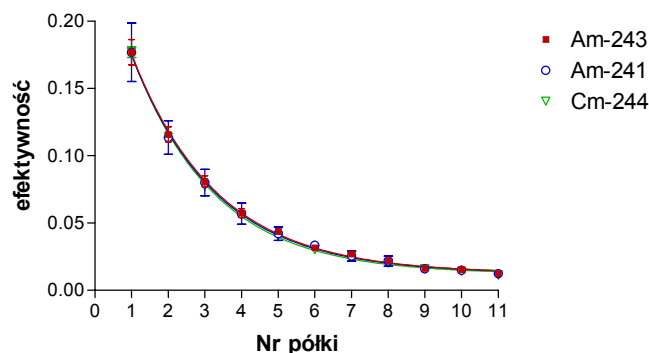
Liczby zliczeń dla danej linii widmowej dla próbki i dla tła uzyskuje się sumując zliczenia w danym, ustalonym obszarze widma lub całkując dopasowane do kształtu linii widmowych funkcje. Wykorzystuje się tu specjalistyczne oprogramowanie, takie jak program ALF (Aneks 1).

Odzysk Y to z definicji stosunek aktywności znacznika znajdującego się w otrzymanym źródle do aktywności dodanej do analizy. Dla znacznika będącego emiterym alfa oblicza się go ze wzoru:

$$Y = \frac{N_w}{t\Theta_\alpha A_w} \quad \{14\}$$

gdzie: N_p - liczba zarejestrowanych cząstek alfa (pole powierzchni linii widmowej po odjęciu tła) dla znacznika, t - czas pomiaru, Θ_α - efektywność rejestracji cząstek alfa dla danej geometrii pomiaru.

Efektywność rejestracji cząstek alfa Θ_α dla półprzewodnikowego spektrometru promieniowania alfa w szerokim zakresie energii cząstek nie zależy od ich energii. Na rysunku 9 przedstawiono zależność efektywności rejestracji cząstek alfa w funkcji odległości źródła od detektora dla różnych energii cząstek alfa (5.3, 5.5 i 5.8 MeV).



Rys. 9. Przykład zależności efektywności rejestracji cząstek alfa (Θ_α) w funkcji odległości źródła od detektora (półki na których umieszczano źródło znajdują się w odległościach 4 mm od siebie), źródło o średnicy 15 mm, detektor SBSi, o powierzchni 300 mm² (produkcji NZ I IFJ), dopasowane linie to hiperbole.

Efektywność dla danej geometrii pomiaru bada się rejestrując widmo cząstek alfa pochodzące ze źródła wzorcowego o znanej aktywności. Wydaje się oczywistym, że należy tu stosować zakupione źródło przygotowane w laboratorium wzorcowym i posiadające odpowiedni atest. Jednak zazwyczaj mają one aktywność kilku kBq, co przewyższa o co najmniej trzy rzędy wielkości typowe aktywności źródeł otrzymywanych w badaniach radioaktywności środowiska. Ogranicza to stosowanie komercyjnych źródeł wzorcowych z racji pojawiania się problemów pomiarowych wywołanych dużym obciążeniem detektora (np. pojawiają się linie sumacyjne), a przede wszystkim z racji potencjalnej kontaminacji detektora przez jądra odrzutu. Oprócz tego trudno jest zakupić źródła komercyjne mające dokładnie te same rozmiary geometryczne co przygotowywane rutynowo w laboratorium preparaty. Dlatego często efektywność Θ_α wyznacza się we własnym zakresie przygotowując źródło ze znanej objętości roztworu atestowanego znacznika.

Każda metoda przygotowania źródła z roztworu, być może oprócz odparowania, ma skończoną, mniejszą od 100%, nie znaną *a priori* wydajność. Jednak stosując odparowanie trudno jest uzyskać jednorodne i cienkie źródło, dlatego ta metoda nie jest zalecana. Źródła dla wyznaczania efektywności można przygotować np. metodą kolejnego współstrącania z NdF₃, co najmniej dwukrotnie (lepiej: trzykrotnie) strącając z tego samego roztworu o określonej (atestowanej) aktywności zawierającego

dany radionuklid. W ten sposób przygotowuje się kolejne źródła. Przestrzegając jednakowych warunków przygotowania można założyć, że aktywności zdeponowane na kolejno strąconych źródłach tworzą ciąg geometryczny, gdyż wydajności wytworzenia źródła są jednakowe. Stosunki liczb zliczeń na jednostkę czasu dla danej linii widmowej w źródłach pozwalają obliczyć iloraz tego ciągu. Korzystając ze wzoru na sumę nieskończonego ciągu geometrycznego można stwierdzić, że aktywność pierwszego źródła A_1 związana jest z aktywnością A_w radionuklidu (znacznika) użytą do przygotowania źródeł, następującą zależnością:

$$A_w = A_1 \frac{1}{\left(1 - \frac{N_2}{N_1}\right)} \quad \{15\}$$

gdzie: N_2 – skorygowana o liczbę zliczeń tła liczba zliczeń na jednostkę czasu w danej linii widmowej źródła przygotowanego w drugim współstrąceniu, N_1 – liczba zliczeń na jednostkę czasu w danej linii widmowej źródła z pierwszego współstrącenia (również po odjęciu tła).

Ostatecznie, efektywność dla danej geometrii źródła i odległości od detektora można obliczyć korzystając ze wzoru:

$$\Theta = \frac{N_1}{A_w \left(1 - \frac{N_2}{N_1}\right)} \quad \{16\}$$

Stężenie aktywności (zawartość) danego izotopu w próbce oblicza się dzieląc aktywność próbki otrzymaną zgodnie ze wzorem {12} lub {13} przez wziętą do analizy masę próbki (wyznaczoną w określonych warunkach – np. masą suchą, masą spopieloną, masą świeżą).

II.3. Spektrometria promieniowania beta

II.3.1. Promieniowania beta

Promieniowanie beta to strumień elektronów: negatonów (e^-) lub pozytonów (e^+) emitowanych z jąder na skutek rozpadu beta. Rozpad beta jest rozpadem rządonym prawami oddziaływań słabych. Emisji negatonu (zwykłego elektronu) towarzyszy emisja antyneutrino elektronowego ($\bar{\nu}_e$) a emisji pozytonu – neutrino elektronowego (ν_e).

Pierwszą ogólnie uznawaną teorię rozpadu beta opracował E. Fermi. W jego teorii do rozpadu beta dochodzi gdy jeden z nukleonów w jądrze zamienia się na inny: proton na neutron w przypadku rozpadu beta plus (β^+), lub neutron na proton dla rozpadu beta minus (β^-) [Mayer-Kuckuk, 1983].

Nowsza teoria oddziaływań słabych, tzw. Mała Unifikacja, opracowana przez S.Glashowa, S.Weiberga i A. Salama uściśla mechanizm rozpadu beta [Bransden i inni, 1981]. Zgodnie z nią jeden z kwarków walencyjnych wchodzących w skład nukleonu emituje wirtualny bozon pośredniczący W^+ lub W^- zmieniając się w inny kwark, a więc zmieniając swój tzw. zapach. Rozpad beta minus zachodzi przy emisji W^- : neutron, mający walencyjne kwarki ddu zmienia się w proton o walencyjnych kwarkach duu, a więc jeden kwark d zmienia się w u. Rozpad beta plus zachodzi z emisją W^+ , wówczas w jednym z protonów jeden kwark u zmienia się w d, przez co nukleon ten staje się neutronem. W hiperjądrach analogicznym przemianom mogą ulegać cięższe kwarki: s, c, b oraz t.

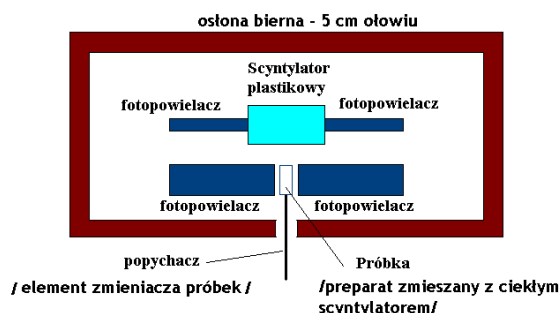
Ze względu na swą wielką masę wirtualny bozon pośredniczący W rozpada się praktycznie natychmiast na naładowany lepton (tu: e^- lub e^+) oraz odpowiednie neutrino lub antyneutrino. Energia i pęd bozonu W , jako stanu niezwiązanego, dzieli się w przypadkowy sposób między produkty jego rozpadu. Z tego względu obserwowane elektrony (e^+ lub e^-) mają widmo ciągłe, charakteryzujące się pewną energią maksymalną – energią dostępną w rozpadzie. W pracach typu tu opisywanych nie rejestruje się energii unoszonej przez neutrino (czy też antyneutrino). Kształt widma energetycznego cząstek beta w zakresie wysokich energii niezbyt różni się dla widm negatonów i pozytonów, natomiast dla niskich energii istnieje taka różnica wywołana wpływem przyspieszającym (dla e^+) lub hamującym (dla e^-) dodatniego ładunku jądra atomowego. Przeciwnie oddziaływanie ujemnie naładowanej chmury elektronowej atomu jest zanedbywalnie małe z racji znacznie mniejszej gęstości

przestrzennej tego ładunku. W związku z tym widma pozytonów dla energii bliskich zera mają zerowe natężenia cząstek, podczas gdy w widmach elektronów obserwuje się cząstki od energii praktycznie równej zero [Strzałkowski, 1979; Mayer-Kuckuk, 1983].

II.3.2. Pomiar z wykorzystaniem ciekłych scyntylatorów

Najbardziej dokładną metodą pomiaru widma promieniowania beta była i pozostaje nadal metoda elektromagnetyczna, w której skrzyżowane pola magnetyczne i elektryczne wraz z zespołem przesłon mechanicznych służą do wyboru energii elektronów (lub pozytonów). Metoda ta rozwijana była szczególnie do badania widma elektronów z rozpadu trytu w pobliżu ich energii maksymalnej. Przewidywany kształt widma zależy od wartości masy antyneutrino elektronowego. Z powodu znaczenia tego problemu poznawczego, wiele wysiłku i pomysłowości włożono w konstruowanie coraz bardziej doskonałych (tj. charakteryzujących się względnie wysokim współczynnikiem transmisji i wysoką zdolnością rozdzielczą) spektrometrów elektromagnetycznych. Jednak przyrządy te nie nadają się dobrze do badania promieniotwórczości środowiska. W takich zastosowaniach wykorzystywano dawniej pomiary niespektrometryczne - licznikowe, poprzedzone oczywiście preparatyką radiochemiczną próbek. Wykorzystuje się zarówno liczniki gazowe jak i scyntylacyjne, głównie do badań niskoenergetycznych emiterów promieniowania beta, przede wszystkim trytu ($E_{\max}=19$ keV) i ^{14}C ($E_{\max}=156$ keV). Pod koniec lat pięćdziesiątych (1956) skonstruowano liczniki ciekłoscyntylacyjne, w których wydzielony preparat zawierający dany izotop mieszany jest z cieczą organiczną zawierającą rozpuszczoną domieszkę substancji scyntylacyjnej. Obecnie jest to najbardziej uniwersalna, rozpowszechniona i można chyba zaryzykować takie powiedzenie – najbardziej doskonała metoda pomiaru aktywności beta próbek środowiskowych. Jako ciekły scyntylator pierwotnie stosowano toluen lub benzen z domieszką scyntylatora PPO (2,5-difenylooksazol) i substancji przesuwającej długość emitowanej fali POPOP (1-4, bis-2-(5-fenylooksazolil)). Obecnie, po latach doskonalenia stosuje się scyntylatory niepalne, charakteryzujące się wysoką stabilnością chemiczną, znane pod handlowymi nazwami np. Ultra Gold firmy Canberra lub HiSafe 3 firmy Wallac.

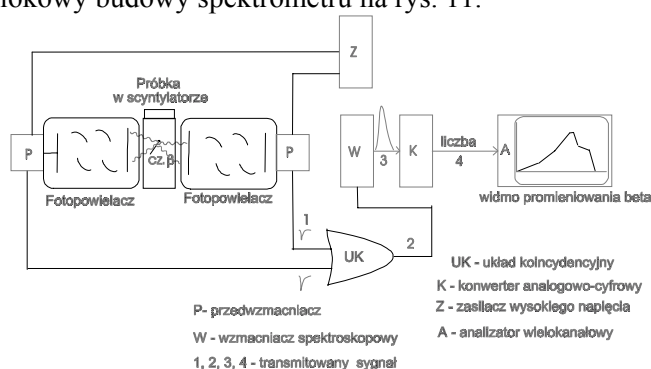
Światło scyntylacji rejestruje fotopowielacz, impulsy są zliczane i rejestrowane. Do redukcji biegu własnego pierwsze liczniki były wyposażane w chłodzone fotopowielacze. W następnych latach doskonalono układy pomiarowe: wprowadzono rejestrację scyntylacji w układzie koincydencyjnym dwóch fotopowielaczy, zmniejszono termoemisję spontaniczną z ich fotokatod, przez co możliwym stało się zrezygnowanie z konieczności chłodzenia przyrządu. Kolejną, bardzo istotną modyfikacją było przekształcenie licznika w spektrometr poprzez dodanie analizatora amplitudy sygnału, czyli układu konwertera analogowo-cyfrowego sprzęgniętego z pamięcią – istota działania została opisana powyżej przy opisie spektrometru alfa. W przypadku liczników scyntylacyjnych stosuje się konwertery analogowo-cyfrowe działające na zlogarytmowanym sygnale (firma Wallac) lub liniowe (firma Packard-Canberra), jednak również z możliwością prezentacji widm o zlogarytmowanej osi odciętych (energii).



Rys. 10. Schemat rozmieszczenia elementów wewnątrz osłony spektrometru ciekłoscyntylacyjnego na przykładzie spektrometru Wallac 1414-003 Guardian (Fot.2).

Redukcję tła uzyskuje się poprzez stosowanie osłon biernych (ołowianych) o grubości zazwyczaj 5 cm (lub np. 10 cm w przypadku spektrometru Wallac Quantulus), a dalej poprzez wprowadzenie dodatkowego układu antykoincydencyjnej osłony czynnej ze scyntylatorem plastikowym (np. Wallac Guardian), scyntylatorem ciekłym (np. Wallac Quantulus) lub kryształem BGO (np. Packard-Canberra

mod. 2770). Zamiennie do osłony antykoincydencyjnej firma Packard Canberra oferuje np. w modelu 2700 redukcję tła poprzez analizę sygnałów opóźnionych – po rejestracji sygnału analizuje się sekwencję następných, akceptując tylko sygnały mające odpowiednią sekwencję tzw. sygnałów opóźnionych, zgodną z wzorcową dla scyntyacji. Współczesne spektrometry mają układy elektroniczne pozwalające rozróżnić błyski światła pochodzące ze scyntyacji od pochodzących z chemoluminescencji. Sygnał rejestrowany głównie przez jeden z fotopowielaczy układu koincydencyjnego traktowany jest jako impuls fotonów z chemoluminescencji. Proporcja natężenia światła z rejestrowanego przez każdy z dwóch fotopowielaczy jest dobieranym empirycznie parametrem czułości rozdziału. Czas trwania scyntyacji pozwala rozróżnić sygnały pochodzące od rejestracji promieniowania alfa i beta [Oikari i inni, 1987]. Scyntyacje wywołane przez cząstkę alfa powstają w bardzo małym obszarze. Możliwe są reekscytacyjne wzbudzenia, dlatego scyntyacja taka trwa dłużej od scyntyacji powodowanej przez promieniowanie beta, które rozkładają się wzdłuż znacznie dłuższego śladu. Rozdział dokonuje się dobierając empirycznie parametr charakteryzujący czas trwania scyntyacji. Rozmieszczenie elementów istotnych dla przeprowadzenia pomiaru wewnątrz osłony ołowianej spektrometru ciekłoscyntyacyjnego przedstawiono na rys. 10, a uproszczony schemat blokowy budowy spektrometru na rys. 11.



Rys. 11. Uproszczony schemat blokowy spektrometru ciekłoscyntyacyjnego.



Fot. 2. Spektrometr ciekłoscyntyacyjny Wallac 1414-003 Guardian znajdujący się w Laboratorium Badań Skażeń Radioaktywnych Środowiska IFJ.

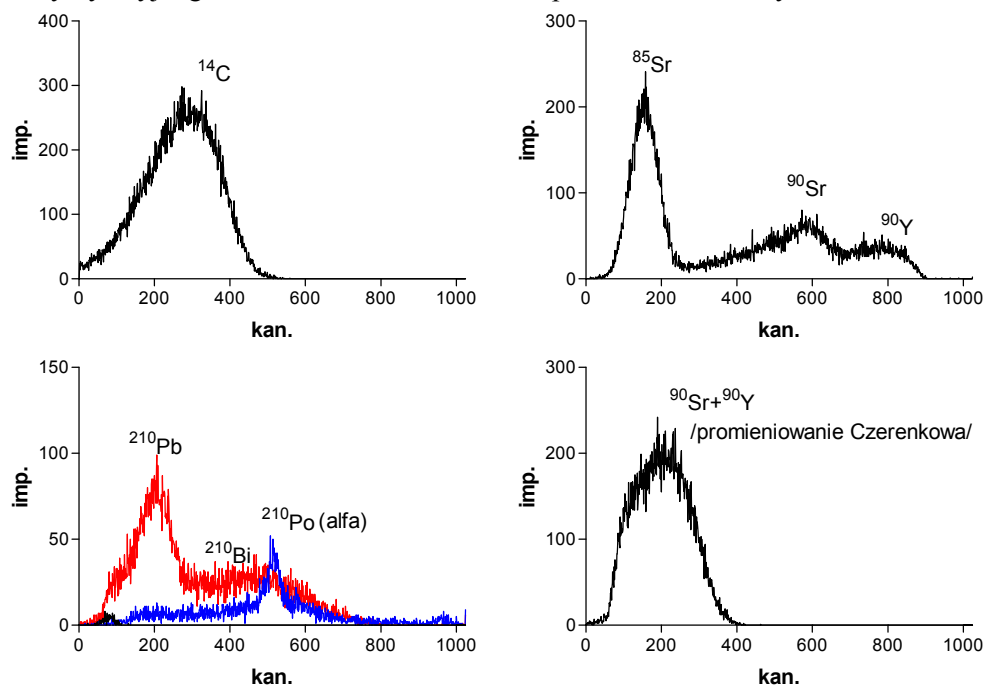
W ostatnich latach pojawiają się próby stosowania półprzewodnikowych, implantowanych detektorów krzemowych o dużej grubości złącza p-n do pomiaru widm promieniowania beta [Courti i inni, 2000]. Detektory takie stanowią rozwinięcie konstrukcji detektorów stosowanych w spektrometrii promieniowania alfa, montowane są w typowych, lekko tylko modernizowanych (głównie zmiana zakresu napięcia zasilającego) spektrometrach promieniowania alfa.

II. 3.3. Widma promieniowania beta

Pomiar ciekłoscyntyacyjny pozwala otrzymywać widma promieniowania beta (oraz alfa), gdyż liczba fotonów, a więc natężenie światła, emitowanego przy przejściu danego rodzaju cząstki, jest

wprost proporcjonalna do energii zdeponowanej w ośrodku. Cząstki alfa o energii rzędu 5 MeV wytwarzają sygnał o podobnym natężeniu światła, jak promieniowanie beta o energii rzędu 500 keV. Osiągane zdolności rozdzielcze (FWHM) dla promieniowania alfa zależą od użytego rodzaju scyntylatora, lecz na ogół nie są mniejsze niż około 300 keV, a więc są to wartości przynajmniej o rząd wielkości większe od osiąganych w półprzewodnikowej spektrometrii alfa.

Przykłady widm promieniowania beta rejestrowanych za pomocą spektrometru ciekłoscyntylacyjnego Wallac 1414-003 Guardian przedstawiono na rysunku 12.



Rys. 12. Przykłady uzyskanych na spektrometrze z ciekłym scyntylatorem widm promieniowania beta: ^{14}C , $^{90}\text{Sr}+^{90}\text{Y}$, widma beta i alfa: $^{210}\text{Pb}+^{210}\text{Bi}+^{210}\text{Po}$, oraz $^{90}\text{Sr}+^{90}\text{Y}$ zarejestrowanego poprzez zjawisko Czerenkowa a nie scyntylacje.

Czynnikiem zaburzającym pomiar w spektrometrze ciekłoscyntylacyjnym jest tzw. gaszenie sygnału. Rozróżnia się dwa rodzaje gaszenia: gaszenie chemiczne i optyczne (barwne). Gaszenie chemiczne polega na zmniejszeniu wydajności produkcji fotonów w scyntylacjach wywołanej obecnością czynnika chemicznego pochłaniającego bezpromieniście część energii przekazanej scyntylatorowi przez cząstkę. Gaszenie barwne polega na pochłanianiu kwantów światła w próbce. Oba rodzaje gaszenia sygnału powodują kompresję widma w stronę niskich energii z jednoczesnym powolnym zmniejszaniem się liczby zarejestrowanych cząstek, gdyż zdarzają się przypadki całkowitego zgaszenia sygnału scyntylacji. Producenci spektrometrów dostarczają pakiety oprogramowania bibliotecznego pozwalającego uwzględnić poprawki na oba te efekty.

Spektrometry ciekłoscyntylacyjne standardowo wyposażone są w zmieniające próbki, znacznie ułatwiające seryjne prowadzenie pomiarów. Fotografia 2 przedstawia spektrometr ciekłoscyntylacyjny Wallac 1414-003 Guardian znajdujący się od 1999 r w Zakładzie IX IFJ i wykorzystany w większości oznaczeń aktywności emiterów promieniowania beta opisanych w pracy. Zewnętrznie praktycznie identyczny jest również spektrometr Wallac 1414-002 Winspectral, zastosowany w jednej z prac przedstawionych w rozdziale III. Różnica między nimi sprowadza się do braku antykoincydencyjnej osłony w układzie pomiarowym w modelu 1414-002.

II.3.4. Metody radiochemiczne

Promieniowanie beta jest znacznie bardziej przenikliwe od promieniowania alfa. Ciągłość widm promieniowania beta i wynikające stąd wzajemne zaburzenie się widm różnych radionuklidów utrudnia, bądź wręcz uniemożliwia, sensowną interpretację obserwowanego widma uzyskanego z np. tylko spopielonej próbki. W większości przypadków badacz zmuszony jest do stosowania metod radiochemicznych wydzielenia i koncentrowania poszukiwanej substancji przed pomiarem. Przykłady

procedur radiochemicznych przedstawiono również w Aneksie 2. Rozróżnienie sygnałów od promieniowania alfa i beta pozwala wykorzystać substancję alfa promieniotwórczą jako znacznik wydajności radiochemicznej (odzysku) w trakcie jednoczesnego pomiaru substancji beta promieniotwórczej. Tą metodę stosuje się np. przy oznaczeniach stężeń ^{241}Pu . Inną metodą kontroli odzysku jest pomiar całkowitego stężenia stabilnych izotopów danego pierwiastka w oryginalnej próbce i w preparacie końcowym odpowiednią metodą chemii analitycznej (np. metodą AAS - spektrometrii absorpcji atomowej). Tę metodę można wykorzystać np. w pomiarach ^{90}Sr , ^{63}Ni , ^{210}Pb . Można też wykorzystać w roli znacznika inny izotop promieniotwórczy danego pierwiastka – o ile energie emitowanego promieniowania beta znacznie się różnią. Przykładowo, możliwe to jest dla ^{90}Sr z wykorzystaniem ^{85}Sr w roli znacznika. Kolejną metodą kontroli odzysku jest jego wyznaczenie grawimetryczne. W tym celu, na początku analizy, w znacznym nadmiarze w stosunku do stężeń obecnych w próbce, dodaje się znaną masę pierwiastka, którego izotop promieniotwórczy jest przedmiotem analizy. Pod koniec analizy ponownie wyznacza się grawimetrycznie ilość tego pierwiastka. Stosunek mas jest równy odzyskowi. Metodę tą można zastosować dla pomiarów ^{90}Sr dla matryc ubogich w stabilny stront, np. dla pewnych rodzajów gleb. Do podobnego pomiaru sprowadza się oznaczenie z wykorzystaniem spektrometru ciekłoscyntylacyjnego abundancji (względnej stężenia) ^{14}C dla potrzeb datowania metodą radiowęglową. Wyznacza się wówczas masę węgla w końcowym preparacie (np. w zsyntezowanym benzenie) oraz mierzy się aktywność izotopu ^{14}C w tym preparacie.

II.3.5. Obliczanie aktywności

Aktywność radionuklidów – emiterów promieniowania beta - oblicza się zazwyczaj korzystając z oprogramowania dostarczonego przez producenta. Spektrometr promieniowania beta podaje na ogół częstość zliczeń (wyrażoną zazwyczaj w zliczeniach na minutę - cpm) dla wybranych obszarów widm promieniowania beta lub alfa oraz szereg innych wybranych parametrów dla widma, m.in. błąd względny częstości zliczeń. Częstość zliczeń przelicza na aktywność (zazwyczaj w rozpadach na minutę – dpm) wykorzystując firmowe dane biblioteczne i dokonując ich wyboru dla danej próbki. Umożliwiające to parametry widma dla danej próbki otrzymuje się z krótkiego dodatkowego pomiaru (wykonywanego przed każdym właściwym pomiarem) standardowego, względnie silnego (~100 kBq) źródła promieniowania gamma (^{133}B lub ^{152}Eu), zbliżanego do próbki na kilkanaście sekund. Procedura ta pozwala uwzględnić poprawki na zmniejszanie się wydajności wywołane gaszeniem barwnym lub chemicznym właściwym dla każdej oddzielnej próbki. Stężenie aktywności (zawartość) A_β w [Bq/kg] oblicza się zgodnie ze wzorem:

$$A_\beta = \frac{A_{dpm}}{mY60} \quad \{17\}$$

gdzie: A_{dpm} – aktywność w próbce wyrażona w rozpadach na minutę (dpm – ang. *decay per minute*) podana przez spektrometr, m – masa próbki [kg], Y – odzysk, 60 - czynnik liczbowy wynikający z przeliczenia minuty na sekundy.

Wydajność zliczania określa się jako stosunek częstości zliczeń do obliczonej aktywności w próbce. Dla emiterów promieniowania beta o dużych wartościach maksymalnych energii, np. dla ^{90}Sr w równowadze z ^{90}Y ($E_{\max} = 2.28 \text{ MeV}$), typowa wydajność wynosi 0.95. Dla niskoenergetycznego promieniowania beta, np. ^3H ($E_{\max} = 18.6 \text{ keV}$) typowa wydajność wynosi nie więcej niż 0.3. Dla cząstek alfa przyjmuje się wydajność równą 1.

Przyjmuje się, że parametrem wykorzystywanym w spektrometrii ciekłoscyntylacyjnej dla scharakteryzowania czułości detekcji jest tzw. figure of merit (FOM). Parametr ten zdefiniowany jest (bezsprzecznie dosyć oryginalnie) jako:

$$\text{FOM} = \Theta_\beta^2 / B \quad \{18\}$$

gdzie: Θ_β - efektywność rejestracji danego promieniowania wyrażona w %, B – liczba zliczeń na minutę dla biegu własnego spektrometru w wykorzystywanym oknie widma.

II.3.6. Metoda niestandardowa – efekt Czerenkowa

Aktywność niektórych izotopów (w szczególności układu $^{90}\text{Sr} \rightarrow ^{90}\text{Y}$) można również oznaczać za pomocą spektrometrów ciekłoscyntylacyjnych wykorzystując nie scyntylacje lecz światło powstające

w zjawisku Czerenkowa [Elrick i Parker, 1968]. Wydzielony z próbki radiochemicznie preparat rozpuszcza się w wodzie lub rozcieńczonym roztworze kwasu (np. HCl), bez dodawania ciekłego scyntylatora. Otrzymywany rozkład natężenia rejestrowanego światła tylko w pewnym ograniczonym sensie (nie wprost) odzwierciedla widmo cząstek beta.

Zjawisko Czerenkowa to emisja promieniowania świetlnego w ośrodku o współczynniku załamania n , przy poruszaniu się w nim cząstki naładowanej z prędkością u większą niż prędkość fazowa v rozchodzenia się światła w tym ośrodku (gdzie $v=c/n$, c -prędkość światła w próżni). Zjawisko to odkrył P.A. Czerenkow w 1934 r (Czerenkow, 1934). Promieniowanie świetlne wysyłane jest w postaci stożka, którego tworząca odchylona jest od trajektorii cząstki o kąt θ , określony warunkiem:

$$\theta = \arccos \{c/(un)\} = \arccos (v/u) \quad \{19\}$$

Jak wspomniano, dla każdej cząstki w danym ośrodku istnieje wartość progowa energii, przy której wystąpi to zjawisko, ponadto wraz ze zmianą prędkości cząstki inny jest kąt θ emisji światła. Dla elektronów poruszających się w wodzie progowa energia wynosi 260 keV, natomiast w roztworze 1 M HCl przyjmuje wartość 284 keV. Dla energii cząstek większych od wartości progowej zjawiska, liczba fotonów N_f produkowanych na centymetr drogi cząstki dana jest wzorem [Frank i Tamm, 1937]:

$$N_f = \frac{\alpha}{c} \int \left(1 - \frac{c^2}{u^2 n^2} \right) d\omega \quad \{20\}$$

gdzie kąt θ jest określony wzorem {19}, α - stała struktury subtelnej ($\sim 1/137$) a całkowanie odbywa się po całym rozpatrywanym zakresie częstotliwości światła.

W praktyce efekt Czerenkowa stosuje się dla oznaczeń izotopów beta promieniotwórczych o energii maksymalnej emitowanych cząstek większej od około 500 keV. Przyjmuje się wówczas, że liczba fotonów emitowanych na 1 cm drogi elektronu wynosi w przybliżeniu $500 \sin^2\theta$ [Aguilar-Benitez i inni, 1986]. Zauważmy, że efektywność rejestracji promieniowania Czerenkowa znacznie wzrasta z energią cząstek (dokładniej: z ich prędkością), gdyż wzrasta wówczas zarówno zasięg elektronów jak i kąt θ . Dla energii cząstki nieznacznie przewyższającej energię progową emitowane w zjawisku Czerenkowa światło jest prawie monochromatyczne, jego długość fali odpowiada położeniu obszaru o anomalnej dyspersji w pobliżu pasma absorpcyjnego. Dla wody światło to jest barwy niebieskawo-zielonej. Wraz ze wzrostem energii cząstki zakres spektralny emitowanego promieniowania świetlnego poszerza się w stronę fal dłuższych. Na rysunku 12 przedstawiono (między innymi) przykład „widma” cząstek beta uzyskanego poprzez rejestrację promieniowania Czerenkowa cząstek beta emitowanych przez ^{90}Sr będący w równowadze z ^{90}Y .

Pomiar aktywności beta poprzez efekt Czerenkowa ma wiele zalet, lecz również nie jest wolny od wad. Główną zaletą jest to, że preparat może być łatwo poddany dalszej obróbce chemicznej (np. w celu wyznaczenia wydajności), ponadto domieszki emitujące niskoenergetyczne promieniowanie beta lub dowolne promieniowanie alfa nie zaburzają pomiaru, znacznie zmniejsza się koszt wykonania jednej analizy z racji wykluczenia scyntylatora oraz nie powstają kłopotliwe odpady organiczne w postaci zużytego tegoż ciekłego scyntylatora. Wadą jest kilkukrotny spadek wydajności rejestracji oraz praktycznie zanik informacji o wyglądzie rzeczywistego widma cząstek beta. Autor stosował tą metodę w pomiarach wykonywanych w laboratorium w Seibersdorfie [Mietelski i inni, 1993].

II.4. Spektrometria promieniowania gamma

II.4.1. Promieniowanie gamma

Promieniowanie gamma to strumień fotonów o energiach większych od kilkudziesięciu keV, sięgających np. w promieniowaniu kosmicznym kilku PeV. Typowy zakres energetyczny promieniowania gamma interesujący dla badań radioaktywności środowiska to zakres od 40 keV do około 3 MeV i taki był stosowany w badaniach przedstawionych w obecnej pracy. W praktyce obejmuje on energie zawarte pomiędzy linią 46.5 keV z rozpadu ^{210}Pb i 2614 keV z rozpadu ^{208}Tl . Oba

wymienione emitery to tzw. radionuklidy naturalne. Jeśli ograniczać badania radioaktywności środowiska do wyłącznie zagadnień związanych ze skażeniami radioaktywnymi to można ograniczyć zakres energii do obszaru zawierającego linie 59.5 keV z rozpadu ^{241}Am i 1596 keV emitowana przez ^{140}La . Obszar ten zawiera energie głównych linii widmowych praktycznie wszystkich pojawiających się w środowisku typowych kontaminatów.

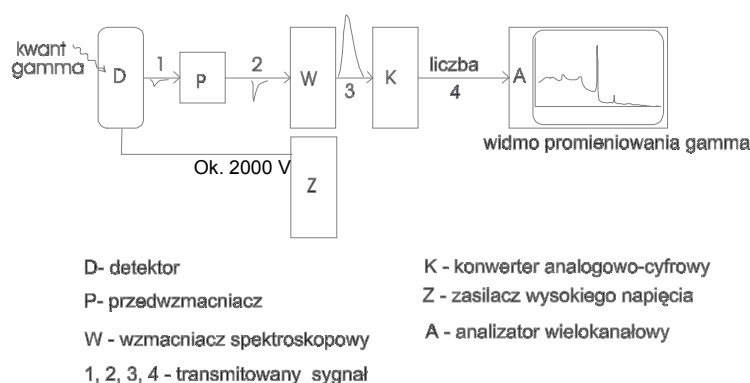
Granica rozdziału promieniowania gamma od niżej energetycznego promieniowania rentgenowskiego jest umowna i oparta zasadniczo na rozróżnieniu mechanizmu powstania promieniowania. Przykładowy foton o energii 74 keV zaliczymy do wysokoenergetycznego promieniowania rentgenowskiego, jeśli został wyemitowany w wyniku przeskoku elektronu na wewnętrzną powłokę elektronową atomu ołowiu, lub do niskoenergetycznego promieniowania gamma, jeśli został wyemitowany z jądra ^{239}Np . Promieniowanie gamma emitowane jest z jądra atomowego, gdy to pozbywa się nadmiaru energii, a więc gdy wcześniej znajduje się w stanie wzbudzonym. Często dzieje się tak bezpośrednio po rozpadzie promieniotwórczym, a zwłaszcza rozpadzie beta promieniotwórczym, który zawsze zmienia rozkład ładunków w jądrze. Jeśli czas półtrwania wzbudzenia jest zauważalnie długi, powstałe po rozpadzie jądro przed emisją kwantu gamma nazywa się jądrem (stanem) izomerycznym.

Promieniowanie gamma oddziałuje z materią poprzez trzy podstawowe procesy: efekt fotoelektryczny (dominuje dla energii poniżej 200 keV), efekt Comptona (najważniejszy w zakresie 200 keV, do około 1.5 MeV) oraz produkcję par e^+e^- (dominuje od około 1.5 MeV, zachodzi dla $E_\gamma > 1.022 \text{ MeV}$) [Strzałkowski, 1979].

II.4.2. Budowa spektrometru promieniowania gamma

Współcześnie podstawową techniką pomiarową spektrometrii promieniowania gamma jest uzyskiwanie widm za pomocą spektrometru wykorzystującego w roli detektora chłodzoną (na ogół ciekłym azotem) germanową diodę półprzewodnikową dużej objętości. Poprzednio stosowano sondy scyntylacyjne, aktualnie pojawiają się również detektory wykorzystujące inne niż german materiały półprzewodnikowe jak np. tellurek kadmu.

Ideowy schemat układu elektronicznego elementarnego półprzewodnikowego spektrometru promieniowania gamma (rys. 13) jest w ogólnym zarysie podobny jak układ dla spektrometru promieniowania alfa opisanego powyżej. Istnieją jednak bardzo istotne różnice. Detektor będący też diodą wykonany jest z monokryształu germanu a nie krzemu, gdyż wyższa liczba atomowa germanu sprzyja pochłonięciu całkowitej energii kwantu w detektorze. w tym samym celu dioda musi mieć znaczną objętość. Konieczne jest chłodzenie diody dla zmniejszenia liczby przypadków spontanicznego pojawiania się ładunków w paśmie przewodnictwa na skutek fluktuacji.



Rys. 13. Uproszczony schemat typowego spektrometru promieniowania gamma z detektorem półprzewodnikowym.

Precyzyjne badanie widm promieniowania gamma, z racji jego przenikliwości, wymaga osłonięcia przestrzeni pomiarowej przed zaburzającym wpływem promieniowania tła. Osiągnięcie satysfakcjonującej czułości pomiaru (niskich limitów detekcji) zależy od uzyskanej redukcji tła. W rejestrowanym przez spektrometr tle wyróżnić można kilka składowych, ich redukcja wymaga stosowania różnych środków. Główne z tych składowych to: promieniowanie gamma naturalnych

i sztucznych pierwiastków promieniotwórczych z gleby, materiałów budowlanych, materiałów konstrukcyjnych detektora i osłony oraz pochodnych rozpadu radonu z powietrza. Redukcję tych składowych tła osiąga się stosunkowo prosto poprzez: osłonięcie przestrzeni pomiarowej ze wszystkich stron materiałem o dużej liczbie porządkowej Z (np. ołów, rtęć, wolfram, a nawet miedź i żelazo), stosowaniem materiałów konstrukcyjnych zawierających niskie zawartości substancji radioaktywnych, odizolowanie przestrzeni pomiarowej od napływu świeżego powietrza (zawierającego radon i jego pochodne). Najcięższym pierwiastkiem posiadającym stabilne izotopy jest ołów, dlatego jest on najczęściej stosowanym materiałem biernych osłon. Niestety zaraz po wytopie zawiera on w sobie typowo aktywność izotopu ^{210}Pb rzędu 2 kBq/kg. W rozpadzie beta minus ^{210}Pb ($T_{1/2}=22$ lata) emitowane jest niskoenergetyczne promieniowanie gamma o energii 46.5 keV i nie wpływa ono istotnie na podniesienie tła. Jednak rozpad beta minus pochodnego nuklidu, ^{210}Bi , zachodzący z energią maksymalną cząstek beta wynoszącą 1.6 MeV produkuje wysokoenergetyczne kwanty promieniowania hamowania podnoszące składową ciągłą tła. Dlatego najbardziej pożądanym materiałem konstrukcyjnym osłon biernych jest ołów ze starych wytopów, gdzie koncentracja ^{210}Pb spada do poziomów równowagi ze śladami ^{226}Ra . Przykładowo, jeden ze spektrometrów Laboratorium Badań Skażeń Radioaktywnych Środowiska w IFJ ma wewnętrzną część osłony wykonaną w ołowiu z wytopu etruskiego sprzed 2500 lat, o aktywności ^{210}Pb na poziomie od 6 do 8 Bq/kg.

Bardziej subtelne efekty widoczne w tle spektrometru pochodzą od reakcji jądrowych zachodzących w detektorze, próbce i osłonie pod wpływem wtórnego promieniowania kosmicznego. Głównie są to reakcje z neutronami należące do reakcji typu (n, γ) . Swobodne neutrony mogą docierać z zewnątrz poprzez zwykłe osłony lub powstawać w masywnej osłonie spektrometru pod wpływem penetrujących ją mionów nie wprost - poprzez wybite protony [Heusser, 1996]. Ocenia się, że optymalna grubość osłony ołowianej wynosi około 15 cm [Núñez-Lagos i Virto, 1996]. Grubsze osłony nie prowadzą już do widocznej redukcji tła zewnętrznego promieniowania gamma, natomiast nasila się w nich proces produkcji neutronów. Redukcja efektów wywołanych przez miony promieniowania kosmicznego wymaga stosowania osłon czynnych (np. opisanych poniżej) lub umieszczania spektrometru na dużej głębokości pod powierzchnią Ziemi.

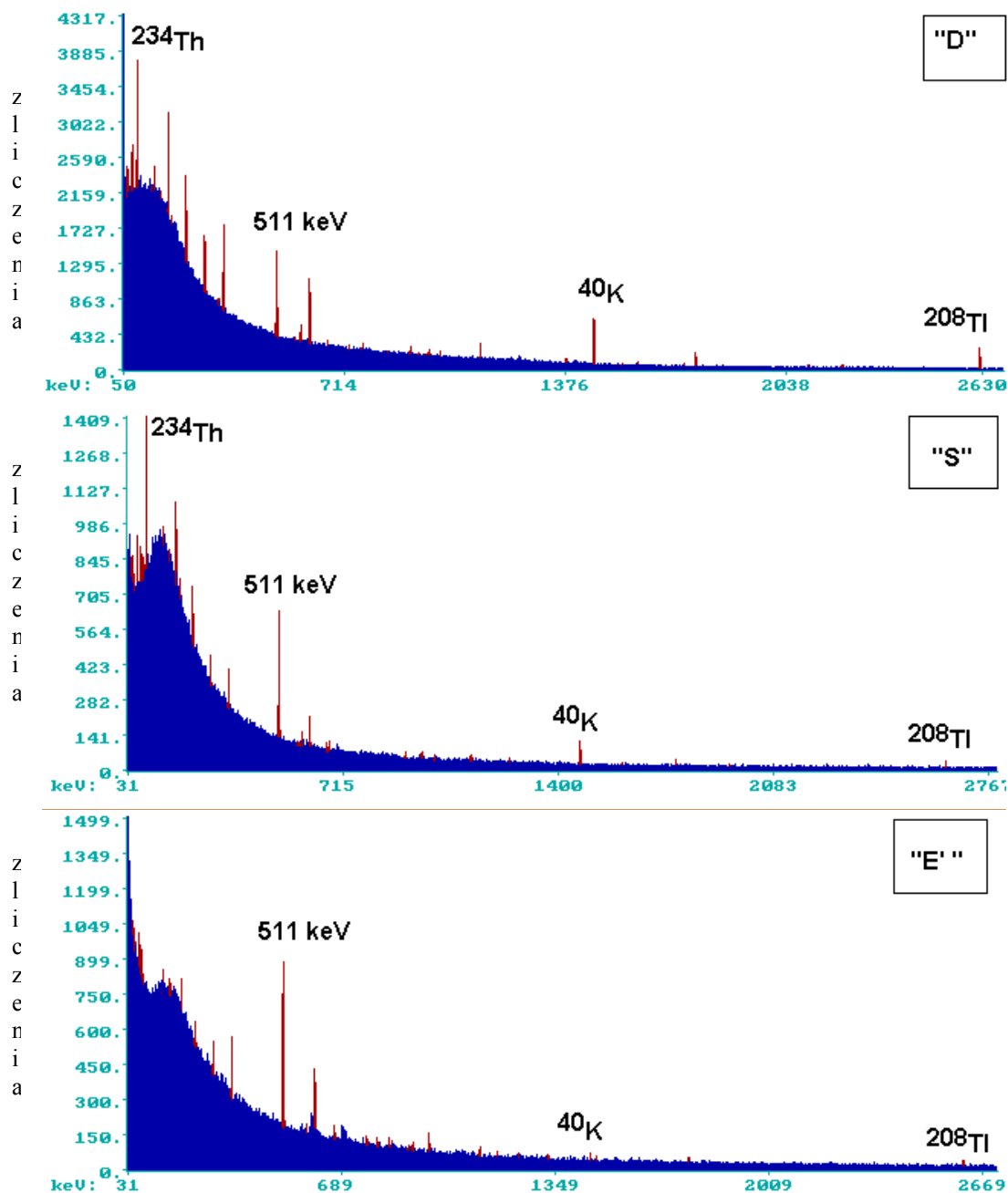
Wpływ tła neutronów docierających od zewnątrz do osłony redukuje się stosunkowo prosto osłaniając dodatkowo spektrometr ich spowalniaczem (np. parafiną) oraz stosując wewnątrz osłony materiał pochłaniający neutrony (np. blachę kadmową). Kadm powinien nie stanowić najbardziej wewnętrznej części osłony z racji emisji promieniowania gamma towarzyszącej pochłonięciu neutronu.

Redukcja tła pustego spektrometru gamma poprzez zwiększanie grubości osłony nie gwarantuje osiągnięcia niskiej granicy oznaczalności. Konieczne jest też minimalizacja natężenia rejestracji rozproszonego promieniowania próbki oraz przesunięcia wzbudzeń fluorescencji rentgenowskiej w osłonie w obszar energetyczny nie rejestrowany przez spektrometr, ponadto konieczny jest dobór materiałów konstrukcyjnych zawierających niskie stężenia śladowych domieszek radioaktywnych (głównie U, Ra, Th, K). Pierwszy z tych celów osiąga się konstruując osłony o dużych przestrzeniach pomiarowych i stosując detektory charakteryzujące się wysoką wartością stosunku sygnału z fotopiku do sygnału z efektu Comptona. Stosuje się tu też pewien rodzaj opisanych poniżej osłon czynnych. Dla osiągnięcia drugiego z celów wewnątrz przestrzeni pomiarowej wyściela się materiałami o niskiej liczbie atomowej, przykładowo stosuje się wyścielenie kolejno: ołów (właściwa osłona), kadm, miedź, czasem jeszcze (nie stosowane w prezentowanych tu realizacjach) ultra-czyste aluminium (wolne od domieszek uranu) i tworzywa sztuczne. W tabeli 6 zestawiono typowe linie widmowe obecne w tle spektrometrów promieniowania gamma wraz z ich natężeniami dla spektrometrów wykorzystywanych w Laboratorium Badań Skażeń Radioaktywnych Środowiska (LBSRŚ). Laboratorium posiada w tej chwili cztery spektrometry z detektorami HPGe. Trzy z nich to detektory koaksjalne (oznaczane „K”, „D”, „S” i „E”) oraz jeden planarny „P”. W okresie prowadzenia omawianych tu prac detektory podlegały naprawom, wymianom (np. „D” zastąpił „K”) i modernizacjom (np. montaż okienka z kompozytu węglowego w „E”), a ich osłony były udoskonalane. Podane natężenia dotyczą osłon po ich ostatniej modyfikacji w roku 1999 polegającej na dodaniu do 10 cm osłony ołowianej i 2 mm osłony kadmowej wewnętrznej osłony z elektrolitycznej miedzi.

Tabela 6. Wybrane linie widmowe obecne w tle spektrometrów promieniowania gamma, ich pochodzenie [Núñez-Lagos i Virto, 1996] oraz natężenia (imp/s) dla spektrometrów stosowanych w Laboratorium Badań Skażeń Radioaktywnych Środowiska IFJ. Litery K,D,S,E,P stanowią kodowe oznaczenie danego detektora .

Detektora/czas pomiaru ⇒			K	D	S	E	E'	P
			koaksjalny, Eff ~10% 1998-2001, w tej samej osłonie co potem D	koaksjalny wnękowy, Eff~15% od 2001 zastąpił K w tej samej osłonie	koaksjalny, Eff~10% po modyfikacji w 1998	koaksjalny, Eff~20% słona anty- koincydencyjna włączona, okienko folia stal nierdz.	koaksjalny, Eff~20% osłona anty- koincydency- jna włączona, ok. kompoz	planarny
Energia [keV]	Isotop	Uwagi nt. pochodzenia linii	23 dni (07.1999)	7 dni (12.2001)	5 dni (02.1998)	8 dni (01.2000)	12 dni (10.2002)	12 dni (10.2001)
46.5	²¹⁰ Pb	Szereg U	<0.0006	< E min	0.00054(21)	<E min	<0.00007	0.00014(5)
53	^{73m} Ge+ ²¹⁴ Pb	⁷² Ge(n,γ) ⁷³ Ge +szereg U	<0.0003	<E min.	0.0003(2)	<E min	0.00031(12)	<0.0001
63.3	²³⁴ Th	Szereg U	0.0015(3)	0.0023(3)	0.0012(4)	<E min	<0.00005	<0.0001
72.8	Pb-X	K _{α2}				<E min		0.00067(11)
74.97	Pb-X	K _{α1}	<0.0005	0.0048(4)	0.0023(4)	<E min	0.00063(17)	0.00120(15)
84.8	Pb-X	K _{β1}	<0.0007		0.0007(2)	<E min	0.00055(15)	0.00043(9)
87.4	Pb-X	K _{β2}				<E min		0.00025(9)
92.6	²³⁴ Th	Szereg U	0.0049(4)	0.0104(4)	0.0033(2)	<0.0002	<0.0001	0.00016(8)
139.5	^{75m} Ge	⁷⁴ Ge(n,γ) ⁷⁵ Ge	<0.0003	<0.0002	0.0003(2)	0.00042(11)	0.00037(9)	<0.0001
143.8	²³⁵ U	Szereg Ac	0.00065(16)	0.0016(3)	0.0004(2)	<0.00007	<0.00005	<0.0001
163.3	²³⁵ U	Szereg Ac	0.00077(13)	0.0006(3)	0.0003(2)	<0.00005	<0.00003	>E max
186	²²⁶ Ra+ ²³⁵ U	Szeregi U, Ac	0.00443(18)	0.0071(3)	0.0022(2)	0.00020(10)	<0.00004	>E max
198.3	^{71m} Ge	⁷⁰ Ge(n,γ) ⁷¹ Ge	0.00083(12)	0.0003(2)	0.0005(2)	0.00067(13)	0.00061(11)	>E max
238.6	²¹² Pb	Szereg Th	0.0026(2)	0.0062(3)	0.0014(2)	0.00059(13)	0.00031(11)	>E max
241.9	²¹⁴ Pb	Szereg U	0.0004(2)	0.0022(3)	0.0005(2)	0.00022(13)	0.00019(11)	>E max
295.1	²¹⁴ Pb	Szereg U	0.00056(12)	0.0044(2)	0.0008(2)	0.00056(9)	0.00049(8)	>E max
338.3	²²⁸ Ac	Szereg Th	0.00068(11)	0.0006(2)	0.0003(1)	0.00019(8)	<0.00006	>E max
351.9	²¹⁴ Pb	Szereg U	0.00097(11)	0.0064(2)	0.00087(15)	0.00109(9)	0.00056(8)	>E max
511.0	(e ⁻ e ⁻)	Prom. kosm.	0.00787(12)	0.0109(2)	0.00608(19)	0.00427(12)	0.00398(9)	>E max
569.7	⁷⁶ Ge	⁷⁶ Ge(n,n')	<0.0005	<0.0002	0.00014(9)	0.00017(6)	0.00008(4)	>E max
583.2	²⁰⁸ Tl	Szereg Th	0.00059(6)	0.0014(1)	0.00028(8)	0.00021(6)	0.00017(5)	>E max
595.9*	⁷⁴ Ge	⁷⁴ Ge(n,n')	0.00045(13)	0.0012(4)	0.0007(5)	0.0019(2)	0.0015(2)	>E max
609.3	²¹⁴ Bi	Szereg U	0.00072(6)	0.0050(2)	0.00079(10)	0.00099(7)	0.00090(6)	>E max
661.6	¹³⁷ Cs	Kontaminacja	0.00031(6)	0.00033(9)	0.00024(7)	<0.00002	<0.00001	>E max
669.6	⁶³ Cu	⁶³ Cu(n,n')	0.00020(6)	0.00015(9)	0.00039(9)	0.00040(5)	0.00023(4)	>E max
691.3*	⁷² Ge	⁷² Ge(n,n')	0.00120(13)	0.0008(3)	0.0006(3)	0.0016(2)	0.0011(2)	>E max
727.3	²¹² Bi	Szereg Th	0.00017(5)	0.00042(11)	<0.00006	<0.00003	<0.00002	>E max
770.8	⁶⁵ Cu	⁶⁵ Cu(n,n')	<0.0005	0.00053(11)	0.00025(6)	0.00015(6)	0.00016(4)	>E max
846.8*	⁵⁶ Fe	⁵⁶ Fe(n,n')	<0.0001	<0.00015	0.00011(5)	0.00064(15)	0.00011(4)	>E max
911.2	²²⁸ Ac	Szereg Th	0.00064(5)	0.00067(11)	0.00030(7)	0.00013(4)	0.00013(4)	>E max
934.0	²¹⁴ Bi	Szereg U	<0.00003	0.00026(9)	0.00006(5)	<0.00003	0.00005(3)	>E max
962.1	⁶³ Cu	⁶³ Cu(n,n')	0.00018(7)	0.00037(13)	0.00035(9)	0.00042(5)	0.00029(4)	>E max
969.0	²²⁸ Ac	Szereg Th	0.00035(7)	0.00052(13)	0.00010(5)	0.00006(4)	0.00005(4)	>E max
1001.0	^{234m} Pa	Szereg U	0.00022(4)	0.00041(8)	0.00023(7)	<0.00003	<0.00001	>E max
1115.5	⁶⁵ Zn	⁷⁰ Ge(n,2nα) ⁶⁵ Zn	<0.0001	<0.0001	0.00016(5)	0.00021(6)	0.00011(3)	>E max
1120.3	²¹⁴ Bi	Szereg U	0.00038(5)	0.00112(10)	0.00017(6)	0.00022(6)	0.00017(3)	>E max
1173.2	⁶⁰ Co	⁶³ Cu(n,α) ⁶⁰ Co	<0.0001	<0.0001	0.00005(4)	0.00011(3)	0.00011(3)	>E max
1238.8	²¹⁴ Bi	Szereg U	<0.0001	0.00052(8)	0.00019(5)	0.00012(4)	0.00008(3)	>E max
1327	⁶³ Cu	⁶³ Cu(n,n')	<0.0001	<0.0001	0.00013(5)	0.00012(4)	0.00012(3)	>E max
1332.5	⁶⁰ Co	⁶³ Cu(n,α) ⁶⁰ Co	<0.0001	<0.0001	<0.00005	0.00010(4)	0.00008(3)	>E max
1460.8	⁴⁰ K	Naturalny	0.00339(6)	0.00440(11)	0.00091(7)	0.00025(4)	0.00015(3)	>E max
1592.5	²⁰⁸ Tl _{uciecz.}	2615-1022 keV	0.00043(3)	0.00057(7)	0.00011(5)	<0.00005	0.00004(2)	>E max
1764.6	²¹⁴ Bi	Szereg U	0.00044(3)	0.00128(7)	0.00018(5)	0.00018(3)	0.00015(3)	>E max
2103.5	²⁰⁸ Tl _{uciecz.}	2615 -511 keV	0.00010(2)	0.00017(4)	<0.00005	<0.00003	<0.00002	>E max
2204.1	²¹⁴ Bi	Szereg U	0.00016(3)	0.00043(5)	<0.00005	<0.00004	0.00005(2)	>E max
2614.5	²⁰⁸ Tl	Szereg Th	0.00138(6)	0.00223(7)	0.00036(5)	0.00015(3)	0.00017(3)	>E max

*-asymetrycznie poszerzone na skutek pośredniej, częściowej, rejestracji energii kinetycznej neutronu.



Rys. 14. Przykłady widm tła promieniowania gamma spektrometrów D, S i E', dla których natężenia linii widmowych i czasy pomiarów zestawiono w tabeli 6

W przypadku wewnętrznej miedzianej osłony detektorów koaksjalnych K i D ma ona grubość 18 mm (wymiana detektorów w tym samym systemie osłon nastąpiła na przełomie 2000/01). Porównanie natężeń linii widmowych ujawnia dwukrotny wzrost natężeń linii bezpośrednich produktów rozpadu ^{238}U (^{234}Th , $^{234\text{m}}\text{Pa}$) i podobny wzrost natężeń dla linii ^{235}U , trzykrotny wzrost natężeń produktów rozpadu ^{222}Rn , przy niezmiennym poziomie natężeń linii z szeregu torowego. Spodziewany był wzrost natężeń o 50%, gdyż detektor D ma tyle większą wydajność (widoczne to jest np. dla natężeń linii anihilacyjnej 511 keV lub linii ^{40}K).

W przypadku detektora (również koaksjalnego) S wewnętrzna warstwa miedzi ma grubość 20 mm. Osłona detektora S lepiej ekranuje detektor od spodu niż osłona detektorów Di K. Ponadto detektor ten (produkcji Silena gmbH) ma stwierdzony niższy poziom zawartości substancji radioaktywnych we własnych materiałach konstrukcyjnych [Mietelski, 1994].

Dla planarnego detektora P grubość ścianek z ołowiu wynosi 5 cm. Wewnątrz niej znajduje 3 milimetrowa warstwa miedzi a w jej wnętrzu 4 mm tworzywa sztucznego (akrylu).

Osłona bierna spektrometru z koaksialnym z detektorem „E” składa się, licząc od zewnątrz, z parafiny o grubości 12 cm (od góry) lub 8 cm (pozostałe 5 stron), 10 cm standardowego ołowiu o zawartości ^{210}Pb równej ok. 2 Bq/g (Polon), 2 mm blachy kadmowej, 5 cm ołowiu z etruskiego wytopu (2500 lat $\approx 120 T_{1/2}^{210}\text{Pb}$) o niskiej zawartości ^{210}Pb równej 6 do 8 mBq/g (Plumbum, Kraków), 10 mm elektrolitycznej miedzi. Parujący ciekły azot wprowadzony jest do wnętrza komory pomiarowej dla zmniejszenia stężenia pochodnych rozpadu radonu. Parafina i kadm w osłonie w założeniu miały ograniczyć efekty wywołane neutronami tła zewnętrznego. Detektor ma ponadto czynną osłonę antykoincydencyjną opisaną poniżej. W lipcu 2002 zmodyfikowano kriostat detektora E poprzez zastąpienie w nim okna ze cienkiej stali nierdzewnej oknem kompozytowym (włókno węglowe, folia kaponowa, folia aluminiowa- det. E’). Widoczny jest korzystny wpływ tej zamiany nie tylko powodującej oczywisty wzrost wydajności w zakresie niskich energii. Przykłady widm tła promieniowania gamma przedstawiono na rysunku 14.

Oprócz redukujących tło promieniowania gamma osłon biernych stosowane są generalnie dwa rodzaje osłon czynnych, a więc pewnych detektorów pracujących w układach antykoincydencyjnych z właściwym detektorem germanowym spektrometru. Pierwszy rodzaj stanowią osłony antykomptonowskie, umieszczone wewnątrz osłon biernych. Zazwyczaj układ taki stanowi kilka detektorów scyntylacyjnych z kryształami NaI(Tl) lub BGO, sprzęgniętych z fotopowielaczami i otaczającymi z zewnątrz próbkę oraz diodę detektora germanowego. Kwant promieniowania gamma rozproszony w efekcie Comptona wewnątrz detektora germanowego wydostając się z niego wytwarza również sygnał w detektorze osłonny. Zsumowany sygnał z detektorów osłonnych przetwarzany jest w oddzielnym konwerterze analogowo-cyfrowym w celu gromadzenia widma promieniowania gamma rejestrowanego w osłonie czynnej. Jednocześnie sygnał ten, po odpowiednim uformowaniu elektronicznym, jest wykorzystany do antykoincydencyjnego bramkowania konwertera analogowo-cyfrowego przetwarzającego sygnał z detektora germanowego. W przypadku optymalnym gromadzone są jednocześnie trzy widma:

1. niskiej rozdzielczości widmo promieniowania gamma rejestrowane w scyntylacyjnej osłonie antykomptonowskiej.
2. widmo wysokiej rozdzielczości rejestrowane wprost, bez a więc bez wpływu aktywnej osłony.
3. widmo antykoincydencyjne: wysokiej rozdzielczości rejestrowane z uwzględnieniem bramkowania z detektora osłonowego.

Takie gromadzenie widm pozwala kontrolować prawidłową pracę systemu, ponadto umożliwia analizę (na podstawie widma bez działającej osłony aktywnej) stężeń izotopów promieniotwórczych dla których kwanty gamma emitowane są w kaskadach (w większości przypadków osłona antykomptonowska zarejestruje dwa emitowane praktycznie jednocześnie kwanty z kaskady jako pojedynczy, lecz rozproszony komptonowsko kwant gamma i wyeliminuje ten przypadek z widma antykoincydencyjnego). Układ taki znacznie poprawia stosunek liczby zliczeń w linii widmowej względem ciągłej składowej widma promieniowania gamma pochodzącej m.in. z rejestracji fotonów o obniżonej w wyniku efektu Comptona energii. Zastosowanie układu takiej osłony czynnej obniża wydatnie granicę oznaczalności dla radionuklidów, których linie widmowe mają energie mniejsze od dominującej w widmie linii widmowej (np. od ^{137}Cs). Podobny efekt dla składowej ciągłej widma promieniowania gamma można otrzymać stosując radiochemiczne oczyszczenie próbki z dominującego w niej izotopu. Realizacja układu antykomptonowskiej osłony znajduje się w planach rozwojowych Laboratorium Badań Skażeń Radioaktywnych Środowiska, Zakładu Fizykochemii Jądrowej IFJ.

Drugi rodzaj osłony antykoincydencyjnej (czynnej) stosowanej w spektrometrach promieniowania gamma to detektor mionów promieniowania kosmicznego. Miony stanowią około 75% cząstek naładowanych wtórnego promieniowania kosmicznego docierającego do powierzchni Ziemi [Aguilar-Benitez i inni, 1986]. Dodatkowo naładowanych mionów jest o około 25%-30% więcej niż ujemnie naładowanych (z ich rozpadu powstają pozytony). Na poziomie morza strumień mionów padających na poziomą powierzchnię wynosi około 140 cząstek na 1 m^2 w ciągu sekundy. Składowa pionowa strumienia mionów wtórnego promieniowania kosmicznego zawiera około 70% całego ich strumienia, pozostałe 30% to składowa horyzontalna. Rozkład kątowy mionów w dobrym przybliżeniu opisuje funkcja $\cos^2\theta$, gdzie θ - kąt liczony od zenitu. Na poziomie morza średnia energia mionów wynosi 2 GeV, natężenie w energetycznym widmie różniczkowym zmienia się jak odwrotność kwadratu ich energii, w szerokim zakresie energii aż do energii kilku TeV, gdzie zaczyna

maleć szybciej, jak $E^{-3.6}$ [Aguilar-Benitez i inni, 1986]. Z racji swojej przenikliwości miony penetrują osłonę bierną, oddziałując w niej emitując kaskady elektromagnetyczne – wysokoenergetyczne fotony konwertujące na pary e^+e^- .

Detektorem mionów może być wielodrutowa komora Charpaka lub scyntylacyjne liczniki plastikowe dużej powierzchni, umieszczone na zewnątrz osłony biernej. W wersji podstawowej detektor mionów znajduje się jedynie od góry osłony. W bardziej rozbudowanych systemach detektory mionów znajdują się ze wszystkich stron osłony biernej. Z chwilą zarejestrowania przez osłonę czynną mionu wygenerowany w niej sygnał (po odpowiednim uformowaniu i opóźnieniu) blokuje na określony czas konwersję sygnału z detektora germanowego w przetworniku analogowo-cyfrowym spektrometru, a tym samym wstrzymuje chwilowo proces zbierania widma z detektora germanowego. Wpływa to wydatnie na obniżenie ciągłej składowej widma promieniowania gamma w pełnym jego zakresie. Osłona taka działa analogicznie jak umieszczenie spektrometru na głębokości kilkudziesięciu metrów poniżej poziomu gruntu, gdyż ze względu na skończoną wydajność rejestracji mionów nie są one całkowicie wyeliminowane. Dalsza redukcja tła jest możliwa przy umieszczeniu spektrometru na głębokości co najmniej 300 m poniżej gruntu. Na świecie zrealizowano kilka takich spektrometrów.

Niskotłowy spektrometr promieniowania gamma wykorzystujący jako osłonę czynną komorę Charpaka osłaniającą detektor jedynie z góry działa od roku 2000 w Laboratorium Badań Skażeń Radioaktywnych Środowiska Zakładu Fizykochemii Jądrowej IFJ (detektor „E”). Wygląd pełnej osłony przedstawiono na fotografii 3, a vschemat rozlokowania osłon przedstawiono na rysunku 15. Osłona czynna została zaprojektowana i zrealizowana w Zakładzie Oddziaływań Leptonów IFJ (zespół pod kierunkiem Dr Z. Hajduka). Posiada komorę o wymiarach $70 \times 70 \text{ cm}^2$, w której 160 anodowych drutów sygnałowych wykonanych ze złoconego wolframu tworzy osiem sekcji, każda po 20 drutów, umieszczonych w dwóch warstwach, każda po 4 sekcje. Katody wykonane są z metalizowanej folii mylarowej. Gazem roboczym jest mieszanina składająca się w 80% z argonu i 20% dwutlenku węgla znana pod handlową nazwą corgon, przepływ wynosi około 2.5 l/h. Napięcie pracy wynosi 2000 V. Sygnał z każdej z sekcji po wzmocnieniu i po przetworzeniu w standardowy ujemny sygnał NIM (amplituda -0.7 V, długość 70 ns) przesłany jest do układu logicznego realizującego różne funkcje logiczne sygnałów (po testach wybrano sumę logiczną wszystkich sygnałów), po czym przekształcany jest w sygnał dodatni o amplitudzie +2.5 V i dobranym doświadczalnie czasie trwania równym 19 μs , który steruje bramką antykoincydencji opóźnionej konwertera analogowo-cyfrowego spektrometru. Sygnał z komory pojawia się około 10000 razy na minutę ($\sim 170/\text{s}$), co w przypadku komory o powierzchni 0.49 m^2 oznacza, że miony wywołują co najwyżej 50% impulsów. Pozostałe sygnały to przede wszystkim szumy elektroniczne. Jednak parametry te dobrane są całkowicie świadomie. Dyskryminatory szumów wzmacniaczy poszczególnych sekcji ustawione są na bardzo niskim poziomie. Celem było uzyskanie maksymalnej możliwej wydajności rejestracji mionów przy jednoczesnym ograniczonym wzroście czasu martwego spektrometru. Wybrane ustawienie wywołuje wzrost czasu martwego spektrometru nie przekraczający 0.5%.

W testach komory badano różne konfiguracje logicznych połączeń ośmiu sekcji komory:

- A. suma logiczna z iloczynu sygnałów z kolejnych leżących jedna nad drugą sekcji
- B. iloczyn logiczny sum logicznych sygnałów w obu warstwach
- C. suma logiczna wszystkich sekcji

Oraz pracę bez komory (mod O).

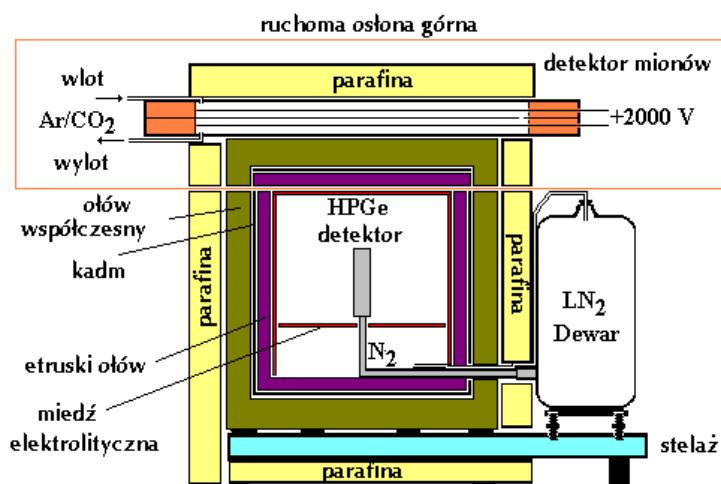
Uzyskane częstości zliczeń w liniach widmowych wywołanych reakcjami jądrowymi z prędkimi neutronami przy włączonej komorze i bez niej zestawiono w tabeli 7. W tabeli 8 przedstawiono częstości zliczeń [imp/s] wybranych elementów tła promieniowania gamma dla różnych konfiguracji spektrometru z osłoną czynną: wyłącznie z osłoną bierną (mod pracy O) oraz po zastosowaniu komory mionowej w modach A, B i C. W dolnej części przedstawiono redukcję (różnicę częstości zliczeń) oraz stosunek częstości zliczeń dla modów B i C względem A.

Tabela 7. Częstości zliczeń [imp/s] dla linii widmowych z procesów $^{72}\text{Ge}(n,n')$ wywołanych prędkimi neutronami, przy wykorzystaniu różnych konfiguracji osłony det. E.

Energia [keV]	Częstość zliczeń [imp/s]	
	Bez komory	Z komorą, mod C
595.9	0.00287	0.00160
691.3	0.00221	0.00150

Tabela 8. Częstości zliczeń [imp/s] wybranych elementów tła promieniowania gamma dla różnych konfiguracji spektrometru z osłoną czynną.

	Kod modu	$\Sigma(50-500)$ keV	$\Sigma(0.5-1)$ MeV	$\Sigma(1-2.7)$ MeV	511 keV	1461 keV
Konfiguracja	A	0.6106	0.1986	0.1655	0.01036	0.00029
	B	0.5417	0.1761	0.1424	0.00777	0.00025
	C	0.3402	0.1128	0.0854	0.00519	0.00032
Różnica	A-B	0.0689	0.0220	0.0231	0.00259	0.00004
Względna redukcja	B:A	0.887	0.887	0.860	0.75	0.86
Różnica	C-A	0.2704	0.0858	0.0801	0.00517	-0.00003
Względna redukcja	C:A	0.557	0.568	0.516	0.50	1.10



Rys. 15. Schematyczny przekrój osłony biernej i czynnej spektrometru promieniowania gamma przedstawionej na fotografii 3.



Fot. 3. Widok zespołu osłon niskotłowego spektrometru promieniowania gamma z osłoną czynną, Schemat konstrukcji osłony przedstawiono na rysunku 15.

II.4.3. Obliczanie aktywności

Dla potrzeb pomiaru gamma spektrometrycznego próbka zasadniczo nie wymaga preparatyki chemicznej. Wystandaryzowana (zhomogenizowana, wysuszona itp.) próbka umieszczana jest w określonych warunkach geometrycznych względem detektora. Najprostszą metodą pomiarową jest metoda względna. Polega ona na pomiarze w identycznych warunkach próbki i wzorca, tj. próbki zawierającej znaną aktywność oznaczanego radionuklidu w matrycy maksymalnie zbliżonej do matrycy badanej próbki. Wówczas, aktywność tego radionuklidu w badanej próbce A_γ wyraża się wzorem {21} analogicznym do wzoru {12}:

$$A_\gamma = A_s \frac{N_\gamma}{N_s} \quad \{21\}$$

gdzie: A_s aktywność danego radionuklidu we wzorcu, N_γ i N_s – odpowiednio liczba zarejestrowanych kwantów gamma w linii widmowej oznaczanego izotopu (skorygowanej na ewentualną niezerową liczbę zliczeń w tle dla danego nuklidu) dla próbki w wzorcu.

W przypadku wyznaczania aktywności radionuklidu gamma promieniotwórczego dla którego nie posiada się wzorca można zastosować metodę bezwzględną. Trzeba pamiętać, że stosując ją jednak narażamy się na większe ryzyko popełnienia błędów systematycznych. Aktywność w próbce wyraża się wówczas wzorem:

$$A_\gamma = \frac{N_\gamma}{t\Theta_\gamma(E_\gamma)I_\gamma} \quad \{22\},$$

gdzie: N_γ - pole powierzchni linii widmowej po odjęciu tła dla oznaczanego izotopu, t - czas pomiaru, I_γ – intensywność kwantowa dla kwantu gamma z danego rozpadu (prawdopodobieństwo emisji kwantu w rozpadzie), $\Theta_\gamma(E_\gamma)$ wartość funkcji efektywności rejestracji kwantów gamma o danej energii E dla danej geometrii pomiaru.

Wydajność kalibruje się dla części lub dla całego zakresu energetycznego spektrometru. Zakłada się charakter zależności pomiędzy wydajnością a energią. Najczęściej stosowaną funkcją opisującą tą zależność jest funkcja $\Theta_\gamma(E_\gamma)$ określona równaniem:

$$\ln\{\Theta_\gamma(E_\gamma)\} = \sum_{k=0}^4 C_k \{\ln(E_\gamma)\}^k \quad \{13\}$$

gdzie parametry C_0, \dots, C_4 są parametrami uzyskanymi z dopasowania metodą najmniejszych kwadratów na płaszczyźnie $\ln\{\Theta_\gamma(E_\gamma)\}, \ln(E_\gamma)$ krzywej będącej wykresem wielomianu czwartego stopnia (lub – z gorszym skutkiem – niższego stopnia) do punktów eksperymentalnych uzyskanych przez pomiar wzorca o znanej aktywności. W tym celu należy przekształcić wzór {22} tak by obliczyć $\ln\{\Theta_\gamma(E_\gamma)\}$ dla wybranych energii oraz obliczyć wartości $\ln(E_\gamma)$ dla tych energii. Jak zawsze wszystkie niepewności pomiarowe określa się metodą różniczki zupełnej, z tym wyjątkiem, że błędów parametrów dopasowania nie powinno traktować się jako rzeczywistych błędów pomiarowych i uwzględniać w obliczanej metodą różniczki zupełnej błędzie pomiaru. Prowadziłoby to do znacznie zawyżonej, wręcz absurdalnej oceny błędu.

Tabela 9. Przykładowy skład izotopów w źródle kalibracyjnym SZM 3 produkcji „Polatom” Świerk .

Izotop	$T_{1/2}$	Energia kwantów gamma
^{241}Am	432.0±0.2 lata	59.54
^{109}Cd	463±1 dni	88.08
^{57}Co	271.84±0.04 dnia	122.06; 136.47
^{139}Ce	137.65±0.07 dnia	165.85
^{203}Hg	46.61±0.19 dnia	279.02
^{113}Sn	115.1±0.2 dnia	391.163
^{85}Sr	64.85±0.03 dnia	514.01
^{137}Cs	10958.0±0.2 dnia	661.66
^{54}Mn	312.5±0.5 dnia	834.84
^{65}Zn	243.9±0.3 dnia	1115.55
^{60}Co	1925.5±0.5 dnia	1173.24; 1332.5

Dla celów kalibracji wydajności detektora stosuje się długożyciowe izotopy promieniotwórcze (ze względu na możliwość rekalkibracji i kontroli w okresie eksploatacji detektora dla zapewnienia jakości wykonywanych analiz). Najchętniej wykorzystuje się radionuklidy emitujące monoenergetyczne promieniowanie (brak efektów sumacyjnych, o czym poniżej). Emitowane przez nie energie powinny pokrywać w miarę jednorodnie i satysfakcjonująco gęsto cały interesujący nas zakres energii. Wybór niestety nie jest duży. Przykład składu izotopowego źródła kalibracyjnego SZM 3 (wg. świadectwa pomiarowego DM/58/Z/96) produkowanego przez Ośrodek Badawczo-Rozwojowy „Polatom” w Świerku przedstawiono w Tabeli 9.

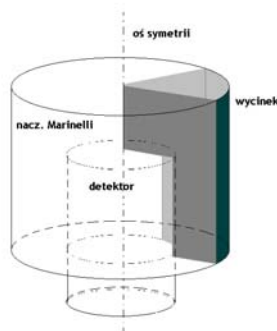
Czasami stosuje się bardziej złożone metody obliczenia aktywności. Głównym powodem potrzeby stosowania takich metod jest niemożliwość uniknięcia niepowtarzalności geometrii pomiarowej. Przykładowo, dysponujemy próbkami o bardzo różnych masach, a dla optymalizacji czasów pomiaru i ich dokładności nie możemy stosować wzorca o rozmiarach odpowiadających najmniejszej próbce, oraz takiej samej, małej części odebranej z każdej z próbek. Wówczas można zastosować algorytm opisujący efektywność jako funkcję dwóch zmiennych: energii i objętości (masy) próbki. Taką metodę przedstawiono np. w pracy [Mietelski, 1994]. Można też obliczyć wydajności wykonując odpowiednie całkowania po objętości próbki i detektora, uwzględniając warunki pochłaniania i rozpraszania promieniowania gamma w materiałach próbki i detektora. Metoda ta, jako mało praktyczna, jest jednak stosunkowo rzadko stosowana. Jej zaletą natomiast jest możliwość, niejako wbudowana w metodę, uwzględnienia efektów związanych z samoabsorpcją promieniowania w próbce, z którym to problemem inne metody radzą sobie słabiej. Efekty te mają największe znaczenia dla niskich energii.

Korzystny jest dobór warunków geometrycznych maksymalizujących wartości funkcji efektywności. Jednym z rutynowo stosowanych zabiegów jest stosowanie tzw. naczyń Marinelli – naczyń pomiarowych w kształcie walca z wydrążonym mniejszym walcem w który wnika detektor. Naczynia takie mają duże objętości (nie mniej niż 500 cm³) i stosuje się je dla pomiarów próbek objętościowych. Mniejsze próbki zazwyczaj bada się stosując walcowate płaskie naczynie leżące na detektorze. Naczynie Marinelli można wykorzystać również w badaniach małych próbek. W tym celu zauważmy, że ostatecznym celem obliczenia aktywności próbki jest obliczenie stężenia aktywności w próbce (zawartości), a więc aktywności w jednostce masy. Np. dla aktywności obliczonej zgodnie ze wzorem {22} dostajemy:

$$A_{gm} = \frac{N_{\gamma}}{t \Theta_{\gamma}(E_{\gamma}) I_{\gamma}} \cdot \frac{1}{m} \quad \{24\},$$

gdzie: m – masa próbki.

Układ detektor – próbka ma symetrię walcową. Wyobraźmy sobie pęk płaszczyzn przecinających się wzdłuż prostej będącą osią symetrii układu i fragment naczynia Marinelli zawartego pomiędzy dwoma dowolnymi takimi półpłaszczyznami (rys. 16). Przyczynę zliczeń kwantów gamma pochodzących od próbki zawartej w tej części naczynia jest proporcjonalny do przyczynku masy próbki pochodzącego z tego fragmentu, gdyż pomiar prowadzi się dla zhomogenizowanej próbki. Stężenie aktywności obliczone na podstawie każdego z takich fragmentów będzie jednakowe przy zastosowaniu współczynników kalibracji wydajności detektora dla pełnego naczynia. Wynik ten ma duże znaczenie praktyczne – nie ma potrzeby używania materiałów wzorcowych służących do weryfikacji kalibracji w ilościach wypełniających całkowicie naczynie Marinelli, wystarczy odpowiednia modyfikacja samego naczynia.



Rys. 16. Wycinek naczynia Marinelli, dla którego można stosować współczynniki kalibracji wydajności identyczne jak w przypadku całego naczynia.

Pomiary gamma spektrometryczne traktowano w większości prowadzonych prac nad Pu, Am i ^{90}Sr jako pomiar rozpoznawczy czy też uzupełniający, przeprowadzany był dla każdej próbki przed przystąpieniem do dalszych analiz radiochemicznych. Oprócz wyznaczenia aktywności cezu służyły one poszukiwaniu innych, ewentualnie obecnych sztucznych emiterów promieniowania gamma. Przede wszystkim poszukiwano ^{154}Eu i ^{155}Eu , radionuklidów obecnych w „gorących cząstkach typu paliwowego” [Mietelski, 1994].

II.4.4. Efekty aparaturowe

Interpretując widma promieniowania gamma nie należy zapominać o pojawiających się efektach aparaturowych. Można do nich zaliczyć przede wszystkim linie sumacyjne i tzw. piki ucieczki (pojedynczej i podwójnej). Efekty te stają się wyraziste zasadniczo przy dużych obciążeniach detektora, więc można by przypuszczać, że w zastosowaniach do badań radioaktywności środowiska nie są istotne. W ogólności jest to prawda, jednak istnieją od tej reguły wyjątki.

Linie sumacyjne obserwuje się, gdy dwa kwanty gamma rejestrowane są w detektorze w krótszych odstępach czasu niż czas rozdzielczy detektora. Wówczas zarejestrowana energia równa jest sumie energii obu kwantów gamma i pojawia się w odpowiednim miejscu widma. Linie sumacyjne pojawiają się w widmach nawet średnio aktywnych próbek, jeśli kwanty gamma należą do tzw. przejść kaskadowych, a więc, gdy w rozpadzie emitowane są co najmniej dwa kwanty natychmiast jeden po drugim. Dzieje się tak np. dla ^{134}Cs (kwanty gamma o energiach 604.7 i 795.0 keV), co prowadzi do powstania linii sumacyjnej 1399.7 keV widocznej czasem w widmach. Dla emiterów promieniowania β^+ linia sumacyjna odpowiada sumie energii linii anihilacyjnej 511 keV i energii emitowanego kwantu gamma, np. dla ^{22}Na linia sumacyjna ma energię 1786 keV = 511+1275 keV. Prawdopodobieństwo pojawiania się linii sumacyjnych wzrasta gwałtownie przy zastosowaniu detektorów wnekowych. W kalibracji wydajności detektora należy unikać stosowania izotopów promieniotwórczych, dla których istnieją przejścia kaskadowe i pojawiają się linie sumacyjne (np. ^{152}Eu).

Piki ucieczki to linie widmowe towarzyszące linii widmowej o energii wystarczającej do produkcji par e^+e^- . Pik pojedynczej ucieczki to linia pojawiająca się dla energii mniejszej o 511 keV od linii właściwej, pik podwójnej ucieczki to linia pojawiająca się dla energii mniejszej o 1022 keV od linii właściwej. 511 keV to energia odpowiadająca masie spoczynkowej elektronu. Wyemitowany z jądra wysokoenergetyczny kwant promieniowania gamma jest zdolny skonwertować w procesie kreacji pary cząstka – antycząstka w parę e^+e^- . Pozyton z tej pary praktycznie natychmiast anihiluje z dowolnym elektronem (negatonem), w wyniku czego powstają dwa fotony o energii 511 keV każdy. Gdy wszystkie fotony zarejestrowane są w detektorze zdeponowana energia nie różni się od energii padającego fotonu. Natomiast gdy jeden lub oba fotony anihilacyjne nie zostają zarejestrowane w detektorze (zostają wyemitowane w innych kierunkach) energia zdeponowana w detektorze jest zmniejszona o 511 keV lub 2x511 keV. W badaniach środowiskowych i w tle spektrometru linie ucieczki obserwuje się najczęściej dla linii 2614 keV (^{208}Tl), ich energie wynoszą 2103 keV i 1592 keV.

Innym efektem aparaturowym widocznym zwłaszcza dla małych germanowych lub krzemowych detektorów planarnych stosowanych do rejestracji niskoenergetycznego promieniowania gamma lub promieniowania rentgenowskiego, jest pojawianie się słabych linii towarzyszących przede wszystkim wyrazistym liniom widmowym i mającym stałe przesunięcie w stronę niższych energii wynoszące 1.8 keV dla detektorów krzemowych lub 9.9 keV dla detektorów germanowych. Energie te to energie kwantów K_α charakterystycznego promieniowania rentgenowskiego odpowiednio dla krzemu i germanu emitowanego w aktach fluorescencji rentgenowskiej. Część energii niesionej przez padający foton (gamma lub rentgenowski) zużytkowana jest na powstanie wzbudzenia atomu detektora. Wyemitowany następnie kwant rentgenowskiego promieniowania charakterystycznego z pewnym skończonym prawdopodobieństwem opuszcza kryształ, wówczas zarejestrowana jest mniejsza energia padającego fotonu.

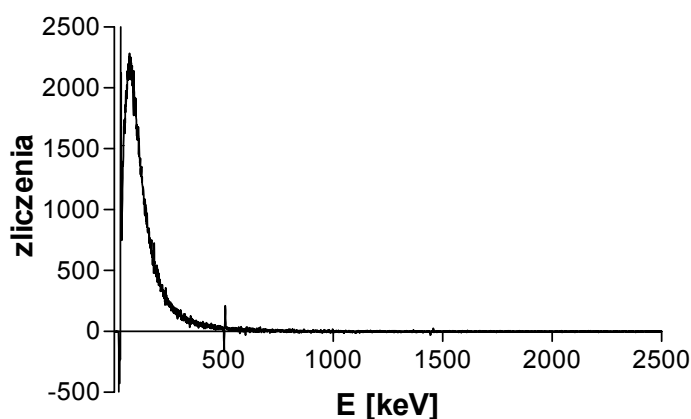
II.4.5. Metoda niestandardowa – promieniowanie hamowania

Promieniowanie hamowania (tzw. *bremsstrahlung*) to strumień fotonów emitowanych przez ładunki elektryczne (przede wszystkim elektrony) w opóźniającym je polu elektrycznym. Hamowanie elektronów zachodzi tym gwałtowniej, im cięższe są atomy (dokładniej: im wyższe mają Z) tworzące

ośrodek do którego wnikają elektrony, gdyż wówczas ich jądra otoczone są silniejszym polem elektrycznym. Dzięki istnieniu tego efektu emiter wyłącznie czystego promieniowania beta (np. ^{90}Sr) może być zaobserwowany za pomocą spektrometru promieniowania gamma. Zjawisko wykorzystywano już w latach sześćdziesiątych w badaniach nad wchłanianiem ^{90}Sr prowadzonych na żywych zwierzętach [Liniecki, 1966], jednak stosowano wówczas aktywności rzędu wielu MBq.

W pracy [Mietelski i Męczyński, 2000] zbadano optymalne warunki geometryczne i materiał absorbenta zwiększającego natężenie promieniowania hamowania powstającego w wyniku oddziaływania z elektronami pochodzącymi z rozpadu $^{90}\text{Sr}+^{90}\text{Y}$. Promieniowanie hamowania rejestrowano z wykorzystaniem spektrometru promieniowania gamma z detektorem germanowym. Obserwowano proporcjonalny do aktywności źródła wzrost liczby zliczeń w ciągłym tle spektrometru w zakresie od 40 keV do ok. 500 keV, z maksimum przypadającym dla około 150 keV. Przykładowe widmo promieniowania hamowania przedstawiono na rys. 17.

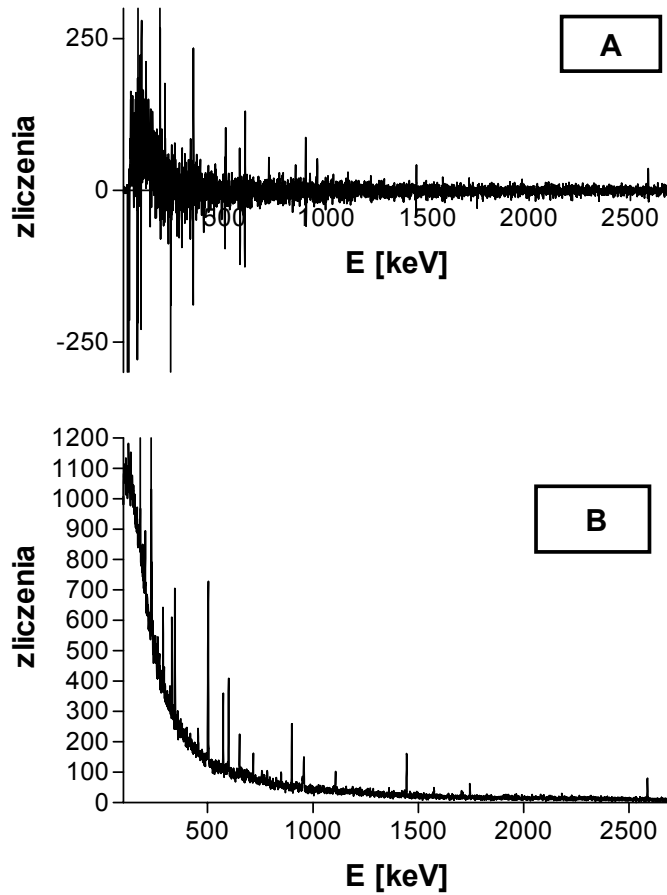
Przeprowadzono również [Mietelski, 2001b] próby dla próbek środowiskowych (kości zwierzęcych). W tym przypadku oprócz ^{90}Sr (w równowadze z ^{90}Y), którego stężenia wyznaczono później niezależnie metodą radiochemiczną z wykorzystaniem spektrometru ciekło scyntylacyjnego, w próbkach obecne były emitery promieniowania gamma takie jak: ^{40}K , ^{22}Na , ^{137}Cs oraz pierwiastki z szeregów torowego i uranowego. Materiałem absorbującym były kości, czyli przede wszystkim fosforan wapnia.



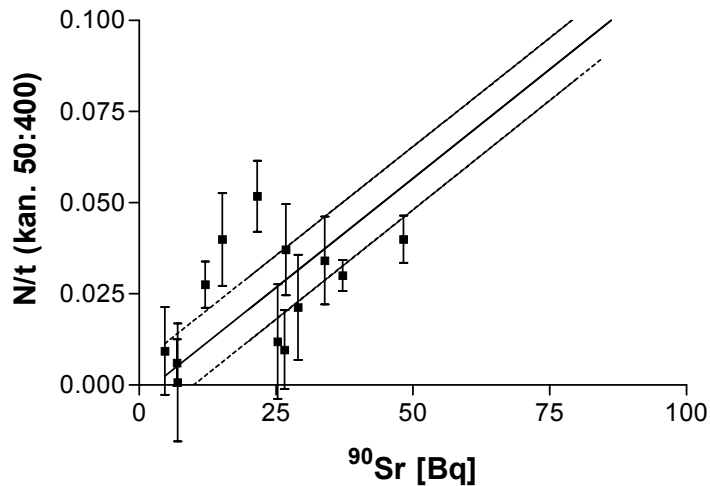
Rys.17. Widmo promieniowania hamowania emitowanego przez źródło ^{90}Sr (w równowadze z ^{90}Y) o aktywności łącznej 4.0 kBq, wymieszane z 80 g fosforanu wapnia (tło odjęte).

Od uzyskanego widma promieniowania gamma odejmowano „kanał po kanale” znormalizowane na czas pomiaru próbki widmo tła, a następnie również skorygowane na tło i znormalizowane na liczbę zliczeń w danej linii widmowej kompletne widma wzorców wykonanych w matrycy z fosforanu wapnia ^{137}Cs , ^{22}Na , ^{40}K , standardów rudy torowej i rudy uranowej. W przypadku rud uranowych i torowej normalizowano w oparciu o średnie liczby zliczeń w kilku liniach widmowych. Do normalizacji widm wykorzystano linie widmowe o energiach 186 keV, 352 keV, 609 keV i 1764 keV (szereg uranowy), 583 keV, 911 keV i 2615 keV (szereg torowy), 662 keV (^{137}Cs), 1275 keV (^{22}Na) i 1461 keV (^{40}K). Obliczenia wykonano w arkuszu kalkulacyjnym Microsoft Excel. Przykładowe widmo uzyskane tą procedurą przedstawiono na rys. 18 wraz z wyjściowym widmem próbki kości.

Efekt promieniowania hamowania był widoczny dla próbek kości rzeczywistych (a więc nie preparatów imitujących kości) przy aktywnościach ^{90}Sr z zakresu 15- 50 Bq w próbce. Na rys. 19 przedstawiono wykres korelacyjny pomiędzy aktywnością ^{90}Sr wyznaczoną metodą radiochemiczną z pomiarem ciekło scyntylacyjnym oraz natężeniem impulsów netto w obszarze energii najbardziej intensywnego natężenia promieniowania hamowania. Korelacja nie jest wysoka (współczynnik korelacji Pearsona $r=0.57$) ale istotna (poziom istotności $p=0.032$). Nachylenie prostej korelacyjnej otrzymanej z uwzględnieniem wzorca ^{90}Sr sugeruje wydajność równą 0.12% . Wydaje się, że metoda ta może mieć zastosowanie przy badaniach prowadzonych na bardziej skażonych terenach. Pomocne może być zastosowanie spektrometru o większej wydajności, bardziej masywnych próbek i lepszej redukcji tła.



Rys. 18. Widma promieniowania hamowania (A) otrzymane z widma promieniowania gamma próbki kości jelenia (B) po odjęciu składowych pochodzących od zidentyfikowanych w oryginalnym widmie radionuklidów (^{40}K , ^{137}Cs , ^{22}Na , szeregi Th i U) oraz tła [Mietelski, 2001b]. Aktywność ^{90}Sr w próbce o masie 80 g wyznaczona niezależnie metodą radiochemiczną wynosiła 49 Bq.



Rys. 19. Zależność pomiędzy aktywnością ^{90}Sr wyznaczoną pomiarem ciekłoscyntylacyjnym z radiochemiczną obróbką próbki (oś odciętych) z oraz natężeniu impulsów netto w obszarze promieniowania hamowania (oś rzędnych). Dopasowa prosta korelacyjna uwzględnia wzorec o aktywności 2 kBq [Mietelski, 2001 b].

II.5. Spektrometria masowa

Spektrometria masowa jest techniką analityczną wynalezioną i stosowaną zasadniczo do badań wzajemnych abundancji stabilnych, a nie radioaktywnych izotopów. Jest wiele odmian spektrometrii masowej i techniki te znajdują one ostatnio coraz większe zastosowanie do badań stężeń radioaktywnych izotopów długożyciowych i bardzo długożyciowych.

Techniki spektrometrii masowej mają przewagę nad pomiarami aktywności dla długożyciowych izotopów. Związek pomiędzy masą m (wyrażoną w gramach) a aktywnością A (wyrażoną w Bq) danego izotopu dany jest wzorem:

$$A = \lambda N = \frac{\ln 2}{T_{1/2}} N = \frac{N_A}{M} m \quad \{25\}$$

gdzie: λ - stała rozpadu danego izotopu, $T_{1/2}$ - jego czas połowicznego zaniku, N - liczba atomów danego izotopu w próbce, N_A - liczba Avogadra, M - gramorównoważnik dla danego izotopu, m - masa danego izotopu w próbce.

Wzór {25} ilustruje tę przewagę. Dla dużych wartości $T_{1/2}$ ciągle małej aktywności odpowiada duża liczba N . Łatwiej jest więc zliczać wprost atomy niż ich rozpady.

W przypadku interesującego nas w niniejszej pracy w sposób szczególny plutonu, pojawia się dodatkowa zaleta polegająca na możliwościach oddzielnego zmierzenia stężeń ^{239}Pu i ^{240}Pu (dla których energie cząstek alfa są praktycznie takie same), ponadto technika ta umożliwia pomiar stężenia ^{242}Pu , a w szczególnych przypadkach także i ^{244}Pu .

Stosowane w badaniach pierwiastków radioaktywnych warianty spektrometrii masowej to przykładowo: ICP MS (*Ion Coupled Plasma Mass Spectrometry* - klasyczna elektromagnetyczna, statyczna, spektrometria masowa z plazmowym źródłem jonów, najczęściej stosowana technika), TOF MS (*Time of Flight Mass Spectrometry* - spektrometria masowa czasu przelotu), RI MS (*Radiation Ionization Mass Spectrometry* - spektrometria masowa z sekwencyjnym, dwu impulsowym rezonansowym pobudzeniem jonów, często łączona z TOF MS), AMS (*Accelerator Mass Spectrometry*, akceleratorowa spektrometria masowa - najnowsza modyfikacja techniki statycznej, elektromagnetycznej, wykorzystująca do przyspieszania cząstek akcelerator tandem Van de Graaffa i stosująca metody detekcji cząstek elementarnych), LM MS (*Laser Microprobe Mass Spectrometry* - wykorzystująca laser wielkiej mocy do uzyskania jonów, sprzęgana zazwyczaj z TOF MS), SI MS - (*Secondary Ions Mass Spectrometry*, spektrometria masowa wtórnych jonów, technika stosowana przede wszystkim w badaniach powierzchni, stosowana m.in. w badaniach gorących cząstek), FT MS (*Fourier Transformation Mass Spectrometry* - spektrometria masowa wykorzystująca do separacji cząstek różnice częstości cyklotronowych różnych mas, widmo częstości transformowane jest następnie na widmo masowe, stąd nazwa). Szczegółowe omówienie wszystkich tych technik stanowi przedmiot oddzielnych monografii obecnych aktualnie na rynku wydawniczym [Hoffmann, Charette i Stroobant, 1998; Johnstone i Rose, 2001].

Różnice pomiędzy rodzajami spektrometrii dotyczą metod uzyskiwania jonów oraz ich separacji. Separacja opiera się na jednej z trzech metod: elektromagnetycznej (statycznej), rezonansowej lub czasu przelotu. We wszystkich metodach jony są przyspieszane. Dla metody czasu przelotu moment jonizacji musi być ściśle określony. Uzyskuje się to stosując pojedynczy impuls laserowy (LMMS) lub sekwencyjnie dwa takie impulsy o odpowiedniej energii fotonów (RIMS). W pierwszym przypadku jony powstają poprzez termiczną jonizację, w drugim przez selektywne pobudzenie wybranych jonów. Powstałe jony są następnie przyspieszane i przelatują pewną odległość w tzw. odcinku dryfu. Jony o różnych masach uzyskują w danym polu elektrycznym różne prędkości, przez co docierają do detektora w różnych momentach. Rejestruje się zmiany czasowe prądu wiązki jonów. W wariacie AMS rejestruje się pojedyncze jony.

W statycznej metodzie elektromagnetycznej stosuje się skrzyżowane statyczne pola elektryczne i magnetyczne (działających jednocześnie lub kolejno na trajektorii jonu). Oddziaływanie pól z jonami wywołuje rozdzielanie pierwotnie wzajemnie równoległych trajektorii naładowanych cząstek charakteryzujących się inną wartością stosunku e/m (gdzie e - ładunek cząstki, m - jej masa) praktycznie niezależnie od energii tych cząstek. Jeśli cząstkami tymi są jony jednokrotnie

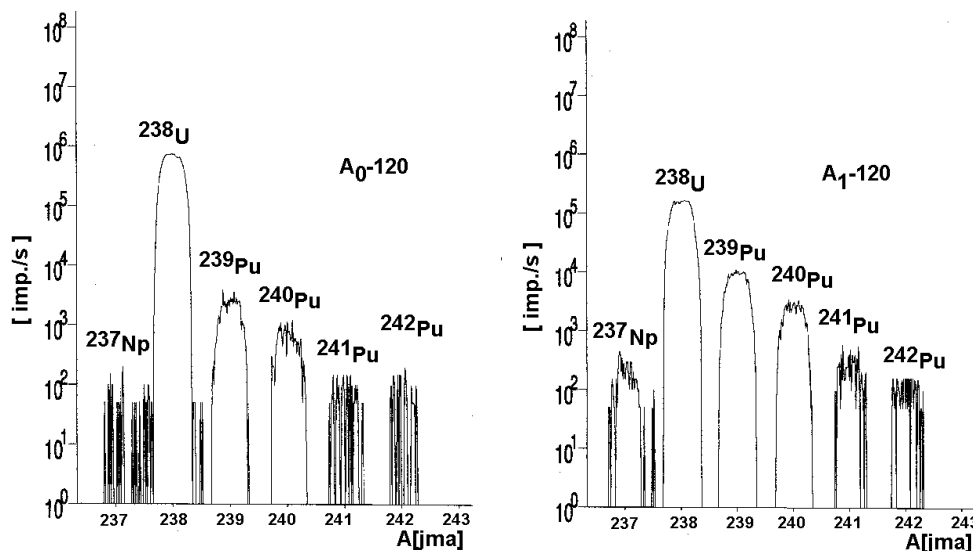
zjonizowane, to separacja następuje tylko ze względu na masę cząstki. Rozseparowane wiązki jonów o jednakowych masach docierają do detektora (np. kliszy fotograficznej, elektrometru, powielacza elektronowego), gdzie są rejestrowane. Udoskonalone konstrukcje mają wielokrotne tzw. sektorowe separowanie.

W spektrometrach rezonansowych wiązka jonów przenika przez obszar elektrod, do których przyłożone jest pole elektromagnetyczne wysokiej częstotliwości. W trakcie przelotu z wiązki eliminowane są wszystkie jony, oprócz tych, które spełniają odpowiedni, rezonansowy warunek dla stosunku e/m . Zmieniając częstość przyłożonego pola można kolejno rejestrować jony o różnych wartościach e/m .

Techniki spektrometrii masowej nie są wolne od trudności. Separacja polega na oddzieleniu czasowym bądź przestrzennym izotopów o różnym stosunku ładunku do masy (e/m). W przypadku pomiaru plutonu główny problem polega na praktycznie powszechnej obecności uranu, który z racji prawie 190 000 razy dłuższego czasu połowicznego zaniku ^{238}U względem ^{239}Pu może być całkowicie niemierzalny metodą spektrometrii promieniowania alfa, lecz stanowić istotną komplikację przy pomiarze za pomocą spektrometrii masowej. Problemem jest imitowanie ^{239}Pu przez $^1\text{H}^{238}\text{U}$ (wyznacza się odpowiednie poprawki), ponadto separacja przestrzenna musi być praktycznie doskonała dla różnicy masy 1 jma przy masach A rzędu 240, co wyklucza stosowanie prostych spektrometrów masowych. Podobnie jak w przypadku spektrometrii promieniowania alfa konieczne jest stosowanie metod radiochemicznego wydzielenia i - o ile pomiary mają być pomiarami absolutnymi - standardów wewnętrznych (znaczników izotopowych).

Aktualnie nie ma w Polsce odpowiedniej jakości spektrometru masowego udostępnianego do pomiarów substancji radioaktywnych, a przynajmniej autorowi nie udało się do niego dotrzeć. Techniki spektrometrii masowej otwierają nowe perspektywy dotyczące pomiarów interesujących z wielu względów radionuklidów takich jak ^{129}I , ^{36}Cl , ^{242}Pu , ^{10}Be itp. Ich rozwój i wykorzystanie wydają się bardzo pożądane. Niestety, są to techniki kosztowne z racji cen urządzeń będących rzędu kilkuset tysięcy dolarów USA.

Pomiary masowych stosunków izotopowych Pu omówione w dalszej części pracy wykonano na Uniwersytecie Stanu Północnej Arizony gdzie przesłano z IFJ źródła zawierające wydzielony z próbek ściółek pluton. [Ketterer, Hafar, Mielwski, 2002]. Na rysunku 20 przedstawiono przykładowe widma masowe preparatów zawierających wydzielony pluton. Widma uzyskano za pomocą spektrometru VG Axiom MC ICP MS, pracującego w trybie niskiej rozdzielczości. Pomiar przeprowadzono na Uniwersytecie Północnej Arizony w Flagstaff (USA).

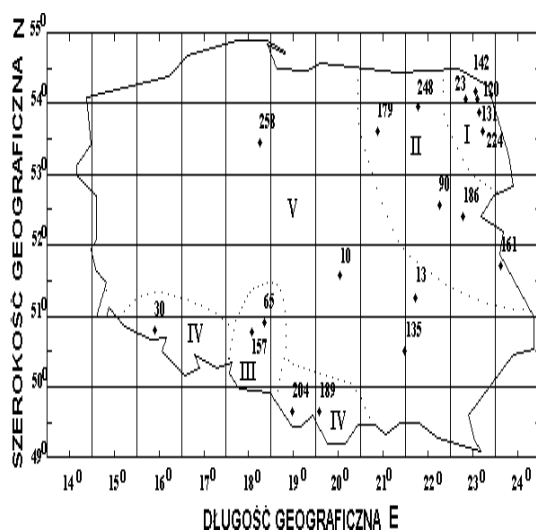


Rys. 20. Przykładowe widma masowe uzyskane dla preparatów otrzymanych z próbek ściółek leśnych z rejonu Augustowa [Ketterer, Hafar, Mielwski, 2002].

III. Badania własne

III.1. Rekonstrukcja opadu Pu, Am, Sr w skali całego kraju – próbki z 1991 r.

Pomiary skażeń gamma spektrometrycznych w ściółkach leśnych [Mietelski, 1994] przeprowadzone w skali całego kraju dla próbek z 1991 roku wykazały przydatność tego rodzaju materiału dla rekonstrukcji składu i intensywności depozycji różnych radionuklidów z opadu promieniotwórczego. Stwierdzono depozycję opadu czarnobylskiego o różnych proporcjach izotopowych w różnych miejscach w kraju. Między innymi znaleziono wówczas ślady ^{144}Ce , ^{154}Eu i ^{155}Eu wyłącznie w Polsce północno-wschodniej, przy względnie niskim poziomie skażeń ^{137}Cs . Wnioskowano wówczas, że radionuklidy takie jak izotopy ceru i europu opadły najprawdopodobniej wraz z względnie drobnymi, kilkumikronowej średnicy „gorącymi cząstkami” wraz z innymi trudno lotnymi izotopami takimi jak np. ^{95}Zr , ^{95}Nb , izotopami Pu, Am, Cm i ^{90}Sr i ^{89}Sr . Opad ten nastąpił z chmury radioaktywnej przemieszczającej się w kierunku Skandynawii, a pochodzącej z pierwotnej emisji, czyli z wybuchu rozpoczynającego pożar reaktora. Chmura ta musiała nie stykać się bezpośrednio z gruntem [Liljenzin i inni, 1988]. Przez to nie powstały istotnie podwyższone skażenia lotnymi radionuklidami (np. ^{137}Cs), transportowanymi na małych aerozolach. Zgodnie z prawem Stokes’a, średnice aerozoli i ich gęstości decydują o tempie ich wypadania z atmosfery.



Rys. 21. Lokalizacja punktów poboru próbek ściółek leśnych pobranych w 1991 r, wybranych do oznaczeń aktywności izotopów Pu, Am i Cm. Numery oznaczone cyframi arabskimi są kodami powierzchni, widoczny jest podział na umowne obszary oznaczone cyframi rzymskimi.

Dla wykazania poprawności identyfikacji względnie krótkożyciowego ^{144}Ce ($T_{1/2}=284$ dni) rozpoczęto oznaczanie aktywności izotopów plutonu w próbkach ściółek leśnych. Istnienie ścisłej korelacji pomiędzy aktywnościami tych radionuklidów na terenach bliskich Czarnobyla było już stwierdzone [Pavlotskaya i Myasoyedev, 1991], podobne własności fizykochemiczne sugerowały średni stosunek aktywności $^{239+240}\text{Pu}$ do ^{144}Ce taki jak w paliwie reaktora, tj. wynoszący $5 \cdot 10^{-4}$ na dzień 1.05.1986 [IAEA 1986]. Niezależnie przewidywania odnośnie proporcji aktywności izotopów ceru i plutonu potwierdzały obserwacje dla izolowanych „gorących cząstek” [Broda i inni, 1989] z terenów północno-wschodniej Polski. Stwierdzona w rejonie Puszczy Augustowskiej [Mietelski, 1994] lub wcześniej, w rejonie Sejn [Pieńkowski i inni, 1987] obecność ^{144}Ce na poziomie aktywności sięgającym odpowiednio 40 kBq/m^2 lub 10 kBq/m^2 (dla przełomu kwietnia i maja 1986) sugerowała zdeponowanie w pewnych rejonach Pojezierza Suwalsko-Augustowskiego $^{239+240}\text{Pu}$ pochodzenia czarnobylskiego na poziomie sięgającym 20 Bq/m^2 . Po uzyskaniu wstępnego potwierdzenia takiego przypuszczenia, badania aktywności izotopów plutonu w ściółkach leśnych kontynuowano po zamknięciu tekstu pracy doktorskiej autora [Mietelski, 1994]. Uzyskane rozszerzone wyniki, przytoczone poniżej, opublikowano w pracy [Mietelski i Wąs, 1995]. Ten sam materiał badawczy

(ściółki leśne) wykorzystano później dla oznaczeń ^{241}Am , $^{243+244}\text{Cm}$ [Mietelski i Wąs, 1997] oraz ^{241}Pu [Mietelski, Dorda i Wąs, 1999]. Pewne szczegóły metody oznaczeń ^{241}Pu są przedstawione poniżej, natomiast stosowana typowa metodyka radiochemiczna przedstawiona jest w Aneksie 2, natomiast szczegóły związane z poborem próbek przedstawiono w pracy [Mietelski, 1994]. Wybrane informacje o próbkach przedstawiono w tabeli 10, a lokalizacje punktów poboru wybranych do pomiarów próbek przedstawiono na rys. 21. Próbkę oznaczaną Ao to warstwa powierzchniowa ściółek leśnych, A1 to głębsza warstwa ściółki - humus. Wstępny przegląd tych wyników opublikowano w pracy [Mietelski, 1998].

Tabela 10. Niektóre dane charakteryzujące próbki ściółek leśnych wybrane dla oznaczeń aktywności izotopów Pu, Am i Cm [Mietelski, 1994].

Kod próbki	Najbliższa miejscowość	Długość geograficzna E	Szerokość geograficzna N	Sucha masa (g)	Aktywność ^{137}Cs (Bq/kg s.m. $\pm 1\sigma$) IX.91
Ao-23	Szczierba	22°50'	54°03'	15.8	607±19
A1-23				14.9	355±15
Ao-120	Płaska	23°05'	54°04'	40.0	870±41
A1-120				40.0	1042±57
Ao-131	Lipsk	23°08'	53°52'	20.0	462±19
A1-131				20.0	787±32
Ao-142	Głęboki Bród	23°03'	54°07'	40.0	360±10
A1-142				22.3	790±24
Ao-224	Trzcianka	23°13'	53°36'	40.0	865±65
A1-224				19.9	374±23
Ao-90	Kurowice	22°15'	52°34'	25.0	2062±51
A1-90				30.1	1958±142
Ao-161	Włodawa	23°37'	51°42'	29.9	260±8
A1-161				36.7	1026±29
Ao-179	Nowiny	20°57'	53°35'	40.0	1716±135
A1-179				21.2	775±56
Ao-186	Sarnaki	22°46'	52°24'	30.0	203±8
A1-186				30.0	1265±71
Ao1-248 [†]	Orzysz	21°46'	53°57'	30.0	539±42
Aoh-248 [†]				40.0	1016±119
A1-248	Turawa	18°04'	50°47'	40.0	234±12
A01-157 [†]				40.0	2628±57
Aoh-157 [†]	Turawa	18°04'	50°47'	40.0	3222±243
A1-157				19.9	284±66
Ao-65	Olesno	18°20'	50°57'	20.0	3320±146
A1-65				21.3	1107±86
Ao-30	Kamienna-Góra	15°54'	50°48'	40.0	461±26
A1-30				40.0	289±34
Ao-189	Widły	19°34'	49°39'	40.0	1542±131
A1-189				30.0	1271±73
Ao-204	Wisła	17°32'	49°37'	40.0	1225±166
A1-204				30.0	533±78
Ao-13	Wola Solecka	21°42'	51°15'	30.0	423±12
A1-13				30.0	588±23
Ao-135	Strużki	21°28'	50°30'	30.0	701±22
A1-135				30.0	585±23
Ao-258	Różanna	18°14'	53°27'	35.1	282±13
A1-258				40.0	542±83
Ao-10	Spała	20°02'	52°59'	20.0	171±6
A1-10				20.0	901±25

[†] - warstwa powierzchniowa ściółki A₀ podzielona na pod-warstwy A₀₁ (wyższą) i A_{0h} (niższą).

Tabela 11. Wyniki pomiarów aktywności ^{238}Pu i $^{239+240}\text{Pu}$ w ściółkach leśnych (lasów szpilkowych) pobranych w 1991 r. [Mietelski i Wąs, 1995].

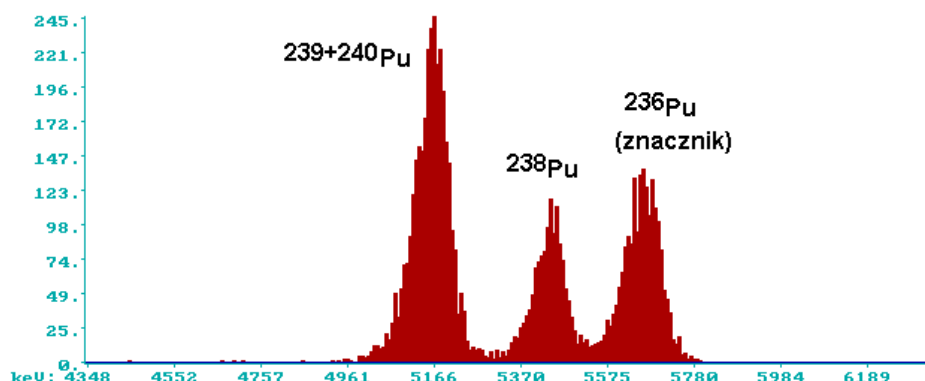
Kod Próbki	Region (rys. 21)	Odzysk (%)	^{238}Pu (Bq kg ⁻¹ s.m. ± 1σ)	$^{239+240}\text{Pu}$ (Bq kg ⁻¹ s.m. ± 1σ)	^{238}Pu (Bq m ⁻² ± 1σ)	$^{239+240}\text{Pu}$ (Bq m ⁻² ± 1σ)
Ao-23		89	1.18 ± 0.16	3.24 ± 0.27	1.2 ± 0.2	3.2 ± 0.3
A1-23	I	71	0.97 ± 0.16	2.70 ± 0.25	4.9 ± 0.8	13.7 ± 1.3
Ao-120	Puszcza	73	1.83 ± 0.20	3.98 ± 0.33	1.8 ± 0.2	4.0 ± 0.3
A1-120	Augustowska	80	2.17 ± 0.22	6.88 ± 0.53	7.0 ± 0.7	22.2 ± 1.7
Ao-131		75	0.52 ± 0.19	1.95 ± 0.21	0.5 ± 0.2	2.0 ± 0.2
A1-131		69	2.20 ± 0.31	5.61 ± 0.48	6.0 ± 0.8	15.4 ± 1.3
Ao-142		37	2.09 ± 0.27	3.37 ± 0.35	1.5 ± 0.2	2.5 ± 0.3
A1-142		60	0.71 ± 0.23	4.78 ± 0.41	2.0 ± 0.6	13.4 ± 1.2
Ao-224		59	1.74 ± 0.16	3.40 ± 0.25	1.9 ± 0.2	3.7 ± 0.3
A1-224		68	1.53 ± 0.27	5.27 ± 0.50	9.5 ± 1.7	33.2 ± 3.0
Ao-90		70	1.43 ± 0.15	2.27 ± 0.20	0.7 ± 0.1	1.2 ± 0.1
A1-90	II	81	0.50 ± 0.10	4.40 ± 0.34	2.1 ± 0.4	18.2 ± 1.2
Ao-161	Inne	87	0.25 ± 0.07	0.44 ± 0.07	0.2 ± 0.1	0.4 ± 0.1
A1-161	rejony	89	0.53 ± 0.07	3.83 ± .28	1.2 ± 0.2	8.8 ± 0.6
Ao-179	wsch.	65	0.47 ± 0.08	1.29 ± 0.10	0.7 ± 0.1	1.8 ± 0.2
A1-179	lub	80	0.04 ± 0.13	1.39 ± 0.15	0.3 ± 0.9	9.4 ± 1.0
Ao-186	płn-	65	0.04 ± 0.05	0.07 ± 0.04	0.04 ± 0.05	0.07 ± 0.04
A1-186	wschodniej	80	1.34 ± 0.14	2.27 ± 0.19	4.1 ± 0.4	6.9 ± 0.6
Ao1-248		67	0.28 ± 0.08	0.64 ± 0.09	0.5 ± 0.2	1.2 ± 0.2
Aoh-248		83	0.25 ± 0.06	1.91 ± 0.16	0.6 ± 0.1	4.6 ± 0.4
A1-248		86	0.04 ± 0.05	0.84 ± 0.07	0.4 ± 0.5	7.8 ± 0.7
Ao1-157	III	42	0.0 ± 0.21	0.25 ± 0.26	0.0 ± 0.2	0.2 ± 0.3
Aoh-157		75	0.0 ± 0.59	1.64 ± 0.08	0.0 ± 0.9	2.6 ± 0.1
A1-157	Śląsk	78	0.0 ± 0.10	1.79 ± 0.10	0.0 ± 1.9	34 ± 2.0
Ao-65	Opolski	84	0.08 ± 0.14	1.35 ± 0.14	0.1 ± 0.2	1.5 ± 0.2
A1-65		85	0.28 ± 0.18	5.76 ± 0.45	1.4 ± 0.9	28.5 ± 2.2
Ao-30	IV	89	0.0 ± 0.05	0.83 ± 0.09	0.0 ± 0.1	0.9 ± 0.1
A1-30	Góry,	49	0.08 ± 0.07	3.55 ± 0.28	0.5 ± 0.5	24.2 ± 1.9
Ao-189	płd.	98	0.18 ± 0.05	3.13 ± 0.22	0.4 ± 0.1	6.8 ± 0.5
A1-189	Polska	87	0.07 ± 0.05	1.93 ± 0.15	0.5 ± 0.4	14.6 ± 1.1
Ao-204		98	0.07 ± 0.03	0.73 ± 0.07	0.3 ± 0.1	3.1 ± 0.3
A1-204		38	0.18 ± 0.09	1.66 ± 0.17	3.3 ± 1.6	30.4 ± 3.1
Ao-13		52	0.14 ± 0.05	0.10 ± 0.04	0.08 ± 0.03	0.06 ± 0.02
A1-13	V	74	0.26 ± 0.06	0.82 ± 0.09	0.80 ± 0.19	2.5 ± 0.9
Ao-135		71	0.05 ± 0.15	1.73 ± 0.18	0.04 ± 0.13	1.5 ± 0.2
A1-135		79	0.12 ± 0.13	3.38 ± 0.29	0.40 ± 0.50	12.0 ± 1.0
Ao-258	centralna	92	0.04 ± 0.03	0.12 ± 0.03	0.03 ± 0.03	0.10 ± 0.03
A1-258	Polska	81	0.10 ± 0.06	3.23 ± 0.25	0.5 ± 0.3	16.5 ± 1.3
Ao-10	liściasty	54	0.0 ± 0.41	0.1 ± 0.8	0.0 ± 0.2	0.04 ± 0.40
A1-10	las, V	67	0.0 ± 0.36	0.2 ± 0.4	0.0 ± 0.4	0.2 ± 0.4

Ao - warstwa powierzchniowa, A1- warstwa głębsza (poziom humusowy).

III.1.1. Alfa-promieniotwórcze izotopy plutonu.

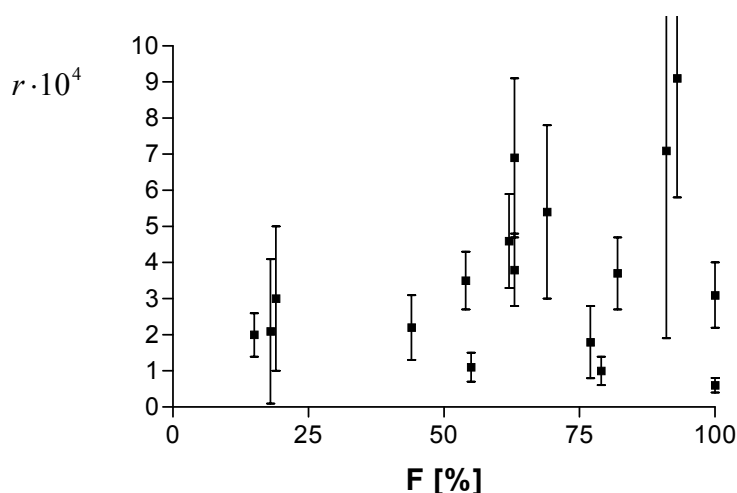
Pomiary aktywności alfa izotopów Pu wydzielonych ze ściółek leśnych przeprowadzono w latach 1994 i 1995 w IFJ, z wykorzystaniem spektrometru promieniowania alfa Canberra 7401 wypożyczonego z laboratorium IAEA w Seibersdorfie. Uzyskane wyniki przedstawiono w tabeli 11. Zakres zmienności aktywności $^{239+240}\text{Pu}$ zawarty jest w przedziale od bliskich zera do niespełna 7 Bq/kg s.m., a dla ^{238}Pu od bliskich zera do 2.2 Bq/kg s.m.. Najwyższe koncentracje ^{238}Pu zaobserwowano dla próbek z rejonu Puszczy Augustowskiej (próbki z regionu I, numery: 23, 120, 131, 142, 224). Potwierdziło to oczekiwania wywiedzione z pomiarów gamma spektrometrycznych, co do regionu i skali depozycji plutonu czarnobylskiego. Prezentowane wyniki pomiarów aktywności ^{238}Pu obarczone były nieznacznie większymi niż dla $^{239+240}\text{Pu}$ niepewnościami względnymi, co

wynikało głównie z zaburzającego działania końcówki zbocza linii widmowej znacznika ^{236}Pu . Utrudniało to czasem rozdział na składowe czarnobylską i opadu globalnego, a generalnie zwiększało niepewności tego rozdziału. Przykładowe widmo cząstek alfa Pu pochodzącego z Czarnobyla przedstawiono na rysunku 22.



Rys. 22. Widmo promieniowania alfa Pu wydzielonego ze ściółki leśnej z Puszczy Augustowskiej (próbka A1-131, detektor SBSi).

W tabeli 12 przedstawiono obliczone na podstawie wyników pomiarów: stosunki aktywności, procentowy udział opadu czarnobylskiego (F ; wzór {6}) oraz sumaryczne aktywności powierzchniowe alfa-promieniotwórczych izotopów plutonu pochodzenia czarnobylskiego oraz z globalnego opadu. Aktywności powierzchniowe obliczono znając masę i powierzchnię pobranych próbek [Mietelski, 1994]. Stosunek aktywności ^{238}Pu do $^{239+240}\text{Pu}$ osiąga czasem wartości sięgające 0.60. Działo się tak głównie dla próbek z Polski Północno-Wschodniej (rys. 21, region I), zwłaszcza dla warstwy powierzchniowej ściółki (próbki A_0). Dla głębszej warstwy i dalej w kierunku zachodnim udział czarnobylskiego opadu wydatnie zmniejsza się. Obliczony procentowy udział składowej czarnobylskiej F zmienia się od 0 do ponad 100% (z racji błędów pomiarowych). Co może zaskakiwać, kilka próbek (np. A_0 -186, A_0 -13, A_0 -161) charakteryzuje się wysokimi wartościami F i niskimi aktywnościami plutonu. Dla wszystkich tych miejsc próbki warstwy A_1 wykazują równie wysokie wartości F . Sugeruje to, że w tych przypadkach warstwa A_0 tylko częściowo zbudowana jest ze szpilek, które były już obecne na drzewach w 1986 roku, a głównie składa się z młodszych, opadłych już po pięciu latach, szpilek.



Rys. 23. Stosunek (r) aktywności $A_{\text{ch}}/^{144}\text{Ce}$ w próbkach ściółki leśnej jako funkcja ocenionego procentowego udziału składowej czarnobylskiej $^{239+240}\text{Pu}$ (F). Obliczenia na dzień 1.05.1986.

Tabela 12. Stosunek aktywności $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$, procentowy udział składowej czarnobylskiej F, stosunek aktywności $^{239+240}\text{Pu}/^{144}\text{Ce}$ (na dzień 1.05.1986) oraz całkowita sumaryczna aktywność alfa izotopów plutonu ($^{238+239+240}\text{Pu}$ pochodzących z globalnego opadu (GF) i opadu czarnobylskiego (Ch) [Mietelski i Wąs, 1995].

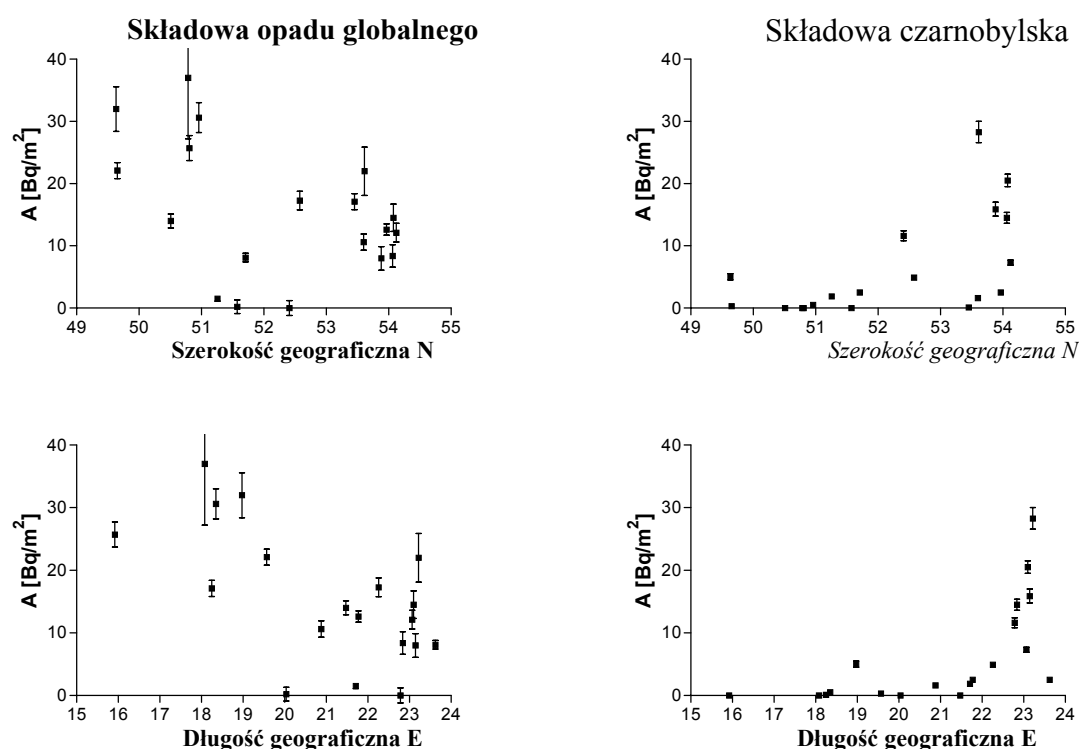
Kod próbki	Region (rys.21)	$^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ $\pm 1\sigma$	F (%)	$A_{\text{ch}}/^{144}\text{Ce}$ ($\times 10^4$) (1.05.1986)	Suma aktywności alfa Pu (GF) ($\text{Bq m}^{-2} \pm 1\sigma$)	Suma aktywności alfa Pu (Ch) ($\text{Bq m}^{-2} \pm 1\sigma$)
Ao-23	I	0.36 ± 0.05	63	6.9 ± 2.2	$1.6 \pm .4$	2.8 ± 0.2
A1-23		0.36 ± 0.06	63	3.8 ± 1.0	6.8 ± 1.8	11.7 ± 0.9
Ao-120		0.46 ± 0.04	82	3.7 ± 1.0	1.0 ± 0.5	4.7 ± 0.3
A1-120		0.32 ± 0.02	54	3.5 ± 0.8	13.5 ± 2.1	15.8 ± 1.0
Ao-131		0.27 ± 0.10	44	2.2 ± 0.9	1.4 ± 0.3	1.1 ± 0.1
A1-131		0.39 ± 0.05	69	5.4 ± 2.4	6.6 ± 1.9	14.8 ± 1.1
Ao-142		0.62 ± 0.07	113*	4.6 ± 1.3	0.0 ± 0.5	4.0 ± 0.3
A1-142		0.15 ± 0.05	15	2.0 ± 0.6	12.1 ± 1.4	3.3 ± 0.3
Ao-224		0.51 ± 0.04	93	9.1 ± 3.3	0.6 ± 0.6	7.6 ± 0.4
A1-224		0.29 ± 0.05	49	-	21.4 ± 3.9	20.7 ± 1.7
Ao-90	II	0.63 ± 0.06	115	7.1 ± 5.2	0 ± 0.2	1.9 ± 0.1
A1-90		0.11 ± 0.02	79	1.0 ± 0.4	17.3 ± 1.5	3.0 ± 0.2
Ao-161		0.56 ± 0.17	102*	0.6 ± 0.2	0 ± 0.1	$.6 \pm 0.1$
A1-161		0.14 ± 0.02	19	3.0 ± 2.0	8.1 ± 0.7	1.9 ± 0.1
Ao-179		0.37 ± 0.06	64	-	0.9 ± 0.2	1.6 ± 0.1
A1-179		0.03 ± 0.09	0	-	9.7 ± 1.3	0 ± 0.1
Ao-186		0.7 ± 0.9	125*	-	0 ± 0.1	0.1 ± 0.1
A1-186		0.59 ± 0.05	108*	3.1 ± 0.9	0 ± 1.2	11.5 ± 0.8
Ao1-248		0.43 ± 0.13	77	1.8 ± 1.0	$.4 \pm 0.3$	1.4 ± 0.2
Aoh-248		0.13 ± 0.03	18	2.1 ± 2.0	4.3 ± 0.4	0.9 ± 0.1
A1-248		0.05 ± 0.04	3	-	7.9 ± 0.7	0.2 ± 0.1
A01-157	III	0 ± 0.6	0	-	0.2 ± 0.3	0 ± 0.1
Aoh-157		0 ± 0.05	0	-	2.6 ± 0.9	0 ± 0.1
A1-157		0 ± 0.08	0	-	34.2 ± 9.7	0 ± 0.1
Ao-65		0.06 ± 0.10	4	-	1.5 ± 0.1	0.1 ± 0.1
A1-65		0.05 ± 0.03	2	-	29.4 ± 2.4	0.4 ± 0.1
Ao-30	IV	0.0 ± 0.06	0	<0.01	0.9 ± 0.1	0 ± 0.1
A1-30		0.02 ± 0.02	0	-	24.8 ± 2.0	0 ± 0.1
Ao-189		0.06 ± 0.02	4	-	6.9 ± 0.5	0.3 ± 0.1
A1-189		0.03 ± 0.03	0	-	15.2 ± 1.2	0.0 ± 0.1
Ao-204		0.10 ± 0.04	12	-	3.0 ± 0.3	0.4 ± 0.1
A1-204		0.11 ± 0.05	14	-	29.0 ± 3.6	4.6 ± 0.5
Ao-13	V	1.5 ± 0.8	>100*	-	0 ± 0.1	0.1 ± 0.1
A1-13		0.32 ± 0.08	55	$1.1 \pm .4$	1.5 ± 0.4	1.8 ± 0.2
Ao-135		0.03 ± 0.09	0	-	1.5 ± 0.2	0 ± 0.1
A1-135		0.04 ± 0.04	0	-	12.5 ± 1.1	0 ± 0.1
Ao-258		0.33 ± 0.22	58	-	0.1 ± 0.1	0 ± 0.1
A1-258		0.03 ± 0.02	0	<0.01	17.0 ± 1.3	0 ± 0.1
Ao-10		0 ± 2.5	0	-	0 ± 0.4	0 ± 0.1
A1-10		0 ± 0.7	0	-	0.2 ± 1.0	0 ± 0.1

"-" w kolumnie 4 oznacza, że aktywność ^{144}Ce była poniżej granicy oznaczalności [Mietelski 1994].

*- w dalszych obliczeniach przyjęto F=100%

W kolejnej kolumnie tabeli 12 przedstawiono wyniki wartości stosunku aktywności $^{239+240}\text{Pu}$ do ^{144}Ce , w chwili awarii. Obliczenia te były możliwe dla 17 próbek. W pozostałych przypadkach aktywność ^{144}Ce była poniżej granicy oznaczalności. Na rysunku 23 przedstawiono wartość tego stosunku w funkcji czynnika F. Dla dwóch próbek (A₀-30, A₁-258) ten stosunek aktywności jest zbyt mały, lecz w tym przypadku aktywność ^{144}Ce była bliska granicy oznaczalności,

co czyni te wyniki mało wiarygodnymi. Dla dwóch innych próbek (A₁-224, A₁-204) stwierdzono obecność plutonu czarnobylskiego, lecz nie znaleziono w pomiarach gamma-spektrometrycznych śladów izotopów ¹⁴⁴Ce oraz ¹⁵⁴Eu i ¹⁵⁵Eu. Może to wynikać również z problemu względnie wysokiej granicy oznaczalności w pomiarze gamma-spektrometrycznym. Obserwowany na rysunku 23 brak systematycznej zależności przedstawionych tam zmiennych oraz oscylowanie zmierzonej wartości stosunku aktywności ²³⁹⁺²⁴⁰Pu/¹⁴⁴Ce wokół przewidywanej wartości typowej dla opadu czarnobylskiego, wynoszącej 5·10⁻⁴ wskazuje na poprawność wykonanych analiz i obliczeń. Co więcej, pamiętając o tym, że aktywność izotopu ceru wyznaczona była z pomiaru gamma-spektrometrycznego całej próbki (masy do około 300 g), a aktywności plutonu wyznaczano z małej części próbki, obserwowana zgodność z przewidywaniami silnie potwierdza model opadu dużej liczby małych „gorących cząstek”. Znacznie mniejsze regularności byłyby obserwowane, jeśli w próbkach znajdowałyby się pojedyncze, masywne „gorące cząstki”.

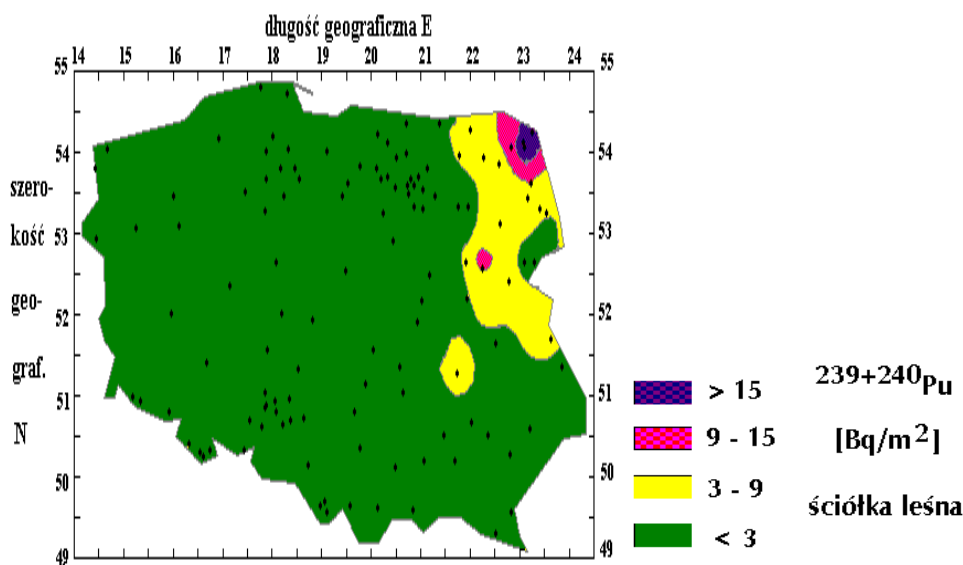


Rys. 24. Rozdział na składową z opadu globalnego i czarnobylskiego aktywności powierzchniowej izotopów plutonu ($^{238+239+240}\text{Pu}$) w ściółkach leśnych w funkcji szerokości i długości geograficznej miejsc poboru próbek [Mietelski i Wąs, 1995].

Obliczona całkowita aktywność powierzchniowa alfa-promieniotwórczego plutonu z opadu globalnego w próbkach warstwy A₁ jest zazwyczaj o rząd wielkości większa od analogicznej w warstwie A₀. Obserwuje się znaczne zróżnicowanie dla sumy obu warstw: od około 1.5 Bq/m^2 (próbka 13 – jeszcze mniej w próbce nr. 10, ale pochodziła ona z lasu liściastego) do 37 Bq/m^2 (próbka 157). Najwyższe aktywności stwierdzono na południu kraju, w regionach górzystych, a więc tam gdzie można się spodziewać większych opadów atmosferycznych, skuteczniej „przemycających” atmosferę w wyniku czego prowadzących do wyższych skażeń z opadu globalnego. Obliczone aktywności powierzchniowe, zawsze są mniejsze od wartości podawanych przez UNSCEAR (równiej 58 Bq/m^2), co wydaje się wynikać przede wszystkim ze stosunkowo płytkiego poboru próbek. Jednak, w odniesieniu do opadu czarnobylskiego głębokość ta może wydawać się wystarczającą (próbki pobierano tylko 5 lat po wystąpieniu opadu). Rozkład geograficzny opadu czarnobylskiego jest odmienny. Przekroje względem szerokości i długości geograficznej sumarycznych aktywności alfa plutonu (a więc $^{238+239+240}\text{Pu}$) przedstawiono na rysunku 24, a przybliżoną mapę (opracowaną na podstawie pomiarów ¹⁴⁴Ce) na rys. 25. Maksymalnie składowa czarnobylska depozycji plutonu

przekracza 25 Bq/m^2 (próbka: 224), a więc sięgała prawie 50% średniej oczekiwanej depozycji z opadu globalnego i była o kilkadziesiąt razy wyższa niż powszechnie przyjęta [PAA, 1991] ocena maksymalna depozycja Pu w Polsce (tam dla Śląska Opolskiego). Wynik ten sugerował ponadto znaczną, maksymalnie sięgającą prawie 2 kBq/m^2 , depozycję ^{241}Pu pochodzenia czarnobylskiego.

Weryfikacja tego ostatniego przewidywania była celem jednej z kolejnych prac. Wcześniej jednak przeprowadzono badania poziomu skażeń ^{241}Am i $^{243+244}\text{Cm}$ oraz izotopami pierwiastków ziem rzadkich (głównie europu) tych samych próbek. Z powodu względnie krótkiego czasu połowicznego zaniku ^{144}Ce ($T_{1/2}=284 \text{ d.}$) utracił on już swoje praktyczne znaczenie jako wygodny marker obecności plutonu czarnobylskiego w próbce. Rolę tę przejęły (Jaracz i inni, 1992), choć z pewnymi ograniczeniami, izotopy europu: ^{155}Eu ($T_{1/2}=4.68 \text{ lat}$) a zwłaszcza ^{154}Eu ($T_{1/2}=8.59 \text{ lat}$). Ograniczenia wynikają z względnie małych ich aktywności w wypalonym paliwie czarnobylskim (Jaracz i inni, 1995). Przewidywane stosunki aktywności $^{239+240}\text{Pu}$ względem izotopów Eu w opadzie czarnobylskim, obliczone na dzień 1.05.1986, wynoszą 0.45 dla ^{154}Eu i 0.28 dla ^{155}Eu (Jaracz i inni, 1995).



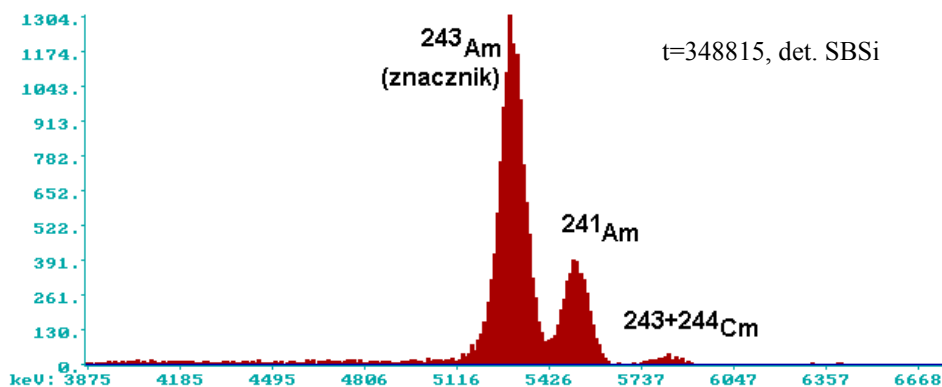
Rys. 25. Przybliżony rozkład geograficzny depozycji tylko składowej czarnobylskiej $^{239+240}\text{Pu}$ w Polsce (Mietelski i inni, 2002), otrzymany na podstawie rozkładu ^{144}Ce w ściółkach leśnych [Mietelski, 1994], zaznaczono miejsca poboru próbek.

III.1.2. Ameryk, kiur i radionuklidy ziem rzadkich

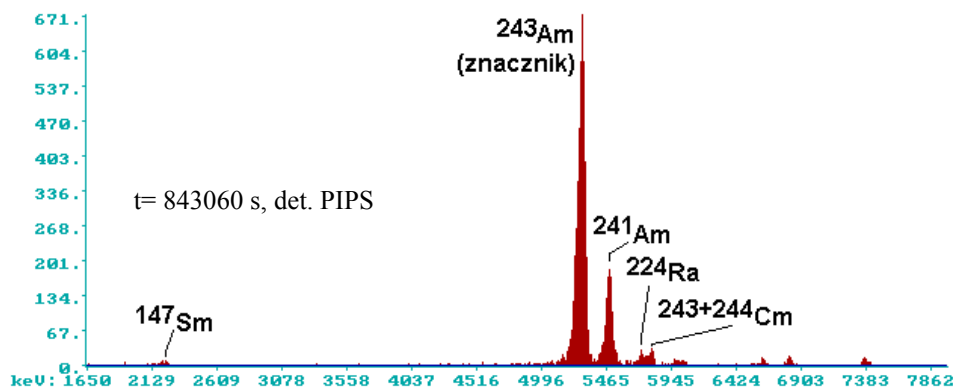
Radiochemiczną analizę aktywności izotopów ameryku, kiuru i niektórych pierwiastków ziem rzadkich przeprowadzono dla 27 próbek ściółek leśnych (Mietelski i Wąs, 1997), dla których wcześniej wyznaczono aktywności alfa promieniotwórczych izotopów plutonu. Stosowano procedurę opisaną w Aneksie 2, wykorzystującą ^{243}Am (prod. NIST, USA) jako znacznik (wzorzec wewnętrzny). Pomiary alfa spektrometryczne przeprowadzono w IFJ na spektrometrze promieniowania alfa Silena AlphaQuattro. Przewidywana [IAEA, 1986], a następnie stwierdzona w opadzie na Ukrainie [Buzinny i inni, 1996] wysoka wartość stosunku aktywności $^{241}\text{Pu}/^{238+239+240}\text{Pu}$ sugerowała względnie wysokie aktywności ^{241}Am . Jednocześnie izotop ten jest obecny w środowisku po testach z bronią jądrową. Przy próbie określenia źródła pochodzenia ^{241}Am można wykorzystać fakt towarzyszenia mu obecnie mieszaniny izotopów kiuru: ^{243}Cm ($T_{1/2}=30 \text{ lat}$) ^{244}Cm ($T_{1/2}=18 \text{ lat}$). Emitują one cząstki alfa o energiach 5.79 MeV. Aktywność izotopów kiuru jest proporcjonalna do składowej czarnobylskiej aktywności ^{241}Am . Obydwa pierwiastki znajdują się w tej samej oczyszczonej frakcji służącej do przygotowania źródła alfa-spektrometrycznego.

Wyniki oznaczeń ^{241}Am , $^{243+244}\text{Cm}$, ^{154}Eu , ^{155}Eu oraz ^{147}Sm zestawiono w tabeli 13. ^{241}Am (linia 5.49 MeV) obecny był na poziomach mierzalnych we wszystkich 27 próbkach, natomiast ślady $^{243,244}\text{Cm}$ (linia 5.79 MeV) widoczne były tylko w 12 widmach, wyłącznie dla próbek pochodzących z

Polski północno-wschodniej (regiony I i II). Największą aktywność ^{241}Am stwierdzono w próbkach z miejsca oznaczonego numerem 23 (okolice Augustowa). Wynoszą one 5.00 ± 0.19 Bq/kg s.m. oraz 4.50 ± 0.27 Bq/kg s.m., odpowiednio dla warstwy A_0 i A_1 . Dla łącznej aktywności obu izotopów kiuru maksymalna aktywność wynosi 0.25 ± 0.02 Bq/kg s.m. Zaobserwowano ją w próbce o kodzie A_0-90 (okolice Sokołowa Podlaskiego, region II). Odpowiednie widmo przedstawiono na rysunku 26. Aktywności kiuru rzędu jednej dziesiątej Bq/kg znaleziono we wszystkich czterech próbkach z regionu I (Puszcza Augustowska).



Rys. 26. Widmo cząstek alfa frakcji Am+Cm próbki A0-90.



Rys. 27. Widmo frakcji ziem rzadkich (RE) próbki A0-90. Widoczny niedoskonały rozdział frakcji RE i Am+Cm.

We widmach promieniowania alfa frakcji pierwiastków ziem rzadkich zaobserwowano linię widmową 2.2 MeV (rys. 27). Została ona zinterpretowana jako linia pochodząca od ^{147}Sm . Ślady tej linii widoczne są również w kilku widmach frakcji ameryku i kiuru, charakteryzujących się zazwyczaj mniejszą szerokością linii widmowych niż widma źródeł frakcje ziem rzadkich, mających większe gęstości powierzchniowe i tym samym większe szerokości linii we widmach. Jednak linia 2.2 MeV dla frakcji amerykowo-kiurowych ma zazwyczaj większą szerokość połówkową od linii innych izotopów. Sugeruje to obecność śladów innych izotopów ziem rzadkich emitujących cząstki alfa o podobnie niskich energiach, np. 1.96 MeV od ^{146}Sm ($T_{1/2}=77$ mln lat). Przedstawione orientacyjne wyniki dla ^{147}Sm zakładają udział jedynie tego izotopu w linii 2.2 MeV, są obliczone na podstawie sumy zliczeń w widmach frakcji pierwiastków ziem rzadkich i frakcji amerykowo-kiurowych, oraz zakładają odzysk równy 100% (a więc raczej zaniżone). Najwyższą aktywność ^{147}Sm stwierdzono dla próbki A_1-224 , (region I), wynosiła ona 124 ± 9 mBq/kg s.m..

Tabela 13. Zawartość ^{241}Am , $^{243+244}\text{Cm}$ oraz izotopów pierwiastków ziem rzadkich (obliczone na dzień 1.09.1991) w wybranych próbkach ściółek leśnych [Mietelski i Wąs, 1997]. Aktywności izotopów europu i samaru nie są poprawione na wydajność chemiczną (odzysk) oceniony dla ^{154}Eu przez porównanie z pomiarami wprost w próbkach jako równy średnio 67%.

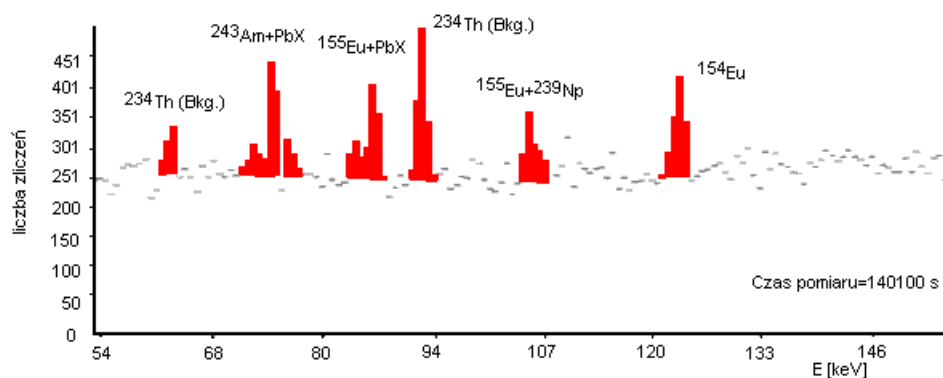
Nazwa /kod próbki	Region (rys. 21)	^{241}Am	$^{243,244}\text{Cm}$	$^{147}\text{Sm}^*$	^{154}Eu	^{155}Eu
(Bq/kg s.m. $\pm 1\sigma$)						
A ₀ -23	I	5.00±0.19	0.16± 0.01	0.081±0.007	1.9±0.4	2.4±1.8
A ₁ -23		4.50±0.27	0.14±0.01	0.101±0.007	1.2±0.6	1.8±2.6
A ₁ -142		2.25±0.06	0.19 ± 0.03	0.098±0.007	1.8±0.3	4.3±2.0
A ₁ -224		3.43±0.28	0.02 ± 0.01	0.124±0.009	0.6±0.5	1.1±2.1
A ₀ -90	II	2.90±0.26	0.25±0.02	0.000±0.002	1.6±0.4	1.5±1.3
A ₁ -90		2.62±0.12	0.08± 0.01	0.089±0.007	0.6±0.3	2.0±1.1
A ₀ -161		1.45±0.10	0.03 ± 0.02	0.000±0.002	0.0±0.2	0.0±0.9
A ₁ -161		2.15±0.08	0.07 ± 0.01	0.104±0.008	0.3±0.2	1.3±1.2
A ₀ -186		0.39±0.02	0.04±0.01	0.006±0.003	0.5±0.2	0.1±0.9
A ₁ -186		2.16±0.05	0.18±0.03	0.047±0.005	2.4±0.4	2.5±1.1
A _{0l} -248		0.89±0.08	0.13 ± 0.01	0.015±0.003	0.4±0.3	0.0±0.9
A _{0h} -248		1.06±0.10	0.03 ± 0.01	0.064±0.004	0.5±0.2	0.7±0.9
A ₁ -248		2.21±0.20	0.00 ± 0.05	0.009±0.002	0.0±0.2	0.0±0.8
A _{0l} -157	III	0.18±0.06	0.00±0.01	0.026±0.003	0.3±0.2	0.8±1.0
A _{0h} -157		0.85±0.10	0.00±0.01	0.056±0.005	0.0±0.2	0.8±1.2
A ₀ -30	IV	0.61±0.05	0.00 ± 0.01	0.041±0.003	0.0±0.2	0.4±0.9
A ₁ -30		1.66±0.07	0.00 ± 0.02	0.046±0.003	0.4±0.2	0.0±0.8
A ₀ -204		2.29±0.09	0.00 ± 0.13	0.001±0.002	0.0±0.2	0.0±0.8
A ₁ -204		2.28±0.16	0.00 ± 0.16	0.063±0.004	0.0±0.3	0.0±1.0
A ₀ -13	V	0.26±0.05	0.00±0.01	0.033±0.003	0.0±0.2	0.9±1.1
A ₁ -13		0.66±0.07	0.00±0.01	0.063±0.004	0.7±0.3	1.0±1.5
A ₀ -135		1.25±0.09	0.00± 0.02	0.063±0.004	0.3±0.3	0.8±1.2
A ₁ -135		1.95±0.18	0.00±0.02	0.087±0.006	0.0±0.3	1.3±1.4
A ₀ -258		0.36±0.09	0.00 ± 0.01	0.003±0.002	0.0±0.2	0.0±0.7
A ₁ -258		1.16±0.06	0.00± 0.01	0.047±0.003	0.0±0.1	0.7±0.7
A ₀ -10		0.87±0.67	0.00±0.01	0.031±0.004	0.0±0.4	0.2±1.6
A ₁ -10		0.75±0.12	0.00±0.03	0.060±0.002	0.0±0.5	0.0±1.7

* - sumaryczna aktywność z frakcji ziem rzadkich i Am+Cm, nie można wykluczyć śladów ^{146}Sm .

Alfa-promieniotwórczy izotop samaru ^{147}Sm ($T_{1/2} = 1.06 \cdot 10^{11}$ lat) występujący naturalnie, jest jednak również produktem rozszczepienia ^{235}U i może występować w opadzie promieniotwórczym. Jego prekursora w szeregu rozpadów beta minus, ^{147}Nd ($T_{1/2} = 11$ dnia), obserwowano w chmurze czarnobylskiej w Krakowie [Florkowski i inni, 1987]. Jednakże szacunkowa ocena depozycji ^{147}Sm z opadu czarnobylskiego oparta na porównaniu aktywności ^{144}Ce [Mietelski, Broda i Sieniawski, 1988] oraz ^{147}Nd [Florkowski i inni, 1987] w powietrzu nad Krakowem oraz wielkości depozycji ^{144}Ce w Polsce północno-wschodniej [Mietelski, 1994] prowadzi do aktywności ^{147}Sm nie przekraczających 100 nBq/m^2 . Analogiczna ocena dla globalnego opadu, oparta tym razem na porównaniu z deponowaną aktywnością ^{137}Cs , i uwzględniająca różnicę wydajności produkcji nuklidów o masach 137 i 147 w procesie rozszczepienia ^{235}U prowadzi do depozycji o tylko nieznacznie większej aktywności równej blisko 500 nBq/m^2 . Obie to oceny prowadzą do znacznie mniejszych aktywności niż minimalne mierzalne aktywności powierzchniowe. Tym samym, widoczny w próbkach ^{147}Sm wydaje się być pochodzenia naturalnego. Na tej podstawie można obliczyć

stężenie stabilnego samaru zakładając naturalną abudancję jego izotopów. Aktywność równa 125 mBq/kg s.m. ^{147}Sm odpowiada 1 ppm naturalnego Sm. Zaobserwowane poziomy odpowiadają podawanym w literaturze, przykładowo 32 ppb samaru (4 mBq/kg s.m. ^{147}Sm) zmierzono w szpilkach sosny [Kabata-Pendias i Pendias, 1993]. W glebach obserwuje się od 0.2 ppm do 6 ppm (tamże), co odpowiada aktywności ^{147}Sm od 25 mBq/kg s.m. do 0.75 Bq/kg s.m.. Gleby mineralne zawierają więcej samaru niż gleby organiczne [Leith i Markert, 1985; Barnard i Halbig, 1985]. W badanych próbkach ściółek leśnych zawsze, za wyjątkiem jednego przypadku, wyższe stężenia ^{147}Sm stwierdzono w głębszych, humusowych (A_1) warstwach ściółki leśnej.

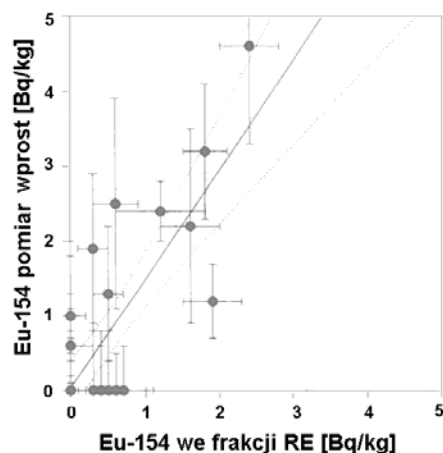
Jak wspomniano aktywności ^{144}Ce ($T_{1/2}=284$ dni) pochodzenia czarnobylskiego, nie były już mierzalne w chwili prowadzenia analiz tj. w roku 1996. Natomiast widma promieniowania gamma preparatów zawierających wydzielone frakcje pierwiastków ziem rzadkich wykazują obecność izotopów europu: ^{154}Eu i ^{155}Eu (rys. 28). Linia 105 keV ^{155}Eu jest zaburzana przez linie o podobnej energii pochodząca od znacznika ^{243}Am i jego produktu rozpadu ^{239}Np . Konieczność uwzględnienia odpowiedniej poprawki zwiększa niepewność pomiaru ^{155}Eu . Bardziej precyzyjnie można wyznaczyć aktywność ^{154}Eu na podstawie linii 123 keV.



Rys. 28. Przykład fragmentu widma promieniowania gamma preparatów zawierających wydzielone ze ściółek leśnych frakcje pierwiastków ziem rzadkich: widoczne linie od ^{154}Eu i ^{155}Eu (zespół osłon jeszcze bez wewnętrznej warstwy miedzi – dodanej w 1998 roku, stąd intensywne linie Pb-X).

Średni odzysk ^{243}Am w frakcjach Cm-Am wynosił 83%, a charakteryzujące jego rozkład odchylenie standardowe równało się 31%. Odzysk ameryku we frakcji ziem rzadkich wynosił 16% z odchyleniem standardowym równym 12%. Rozdział frakcji od siebie nie był więc doskonały. Średni sumaryczny odzysk z frakcji ziem rzadkich i Am+Cm daje 99%, co może budzić zaniepokojenie, gdyż sugeruje możliwość istnienia systematycznego błędu przeszacowania odzysku. Nie można wykluczyć, że mogło to być spowodowane obecnością śladów ^{210}Po , pochodzącego z rozpadu ^{210}Pb , przy długim czasie upływającym pomiędzy wykonaniem źródła a pomiarem. Różnica energii cząstek alfa z rozpadów ^{210}Po i ^{243}Am była mniejsza od zdolności rozdzielczej spektrometru dla uzyskiwanych źródeł, natomiast ^{210}Pb obecny w próbce mógł częściowo znaleźć się w omawianych tu frakcjach. Istnienie tego efektu stwierdzono później (w 1998 roku) w czasie prowadzenia analiz w próbkach porostów antarktycznych [Mietelski, Gaca i Olech, 2000]. Odzysk w później wykonywanych analizach był rzędu 50%-60%, a nie 83%, co sugeruje ewentualne niedoszacowanie (zaniżenie) podawanych tu aktywności, wywołane tym błędem, nie przekraczające jednak 25%.

Z braku znacznika dla ziem rzadkich dokonano wyłącznie oceny średniego ich odzysku we frakcji ziem rzadkich. W tym celu założono jednorodny rozkład ^{154}Eu w próbkach i porównano aktywności ^{154}Eu wyznaczone w całych próbkach metodą spektrometrii promieniowania gamma oraz w wydzielonych frakcjach ziem rzadkich. Z dopasowania metoda najmniejszych kwadratów prostej korelacyjnej otrzymano (jako odwrotność współczynnika nachylenia prostej na rysunku 29) średnią wartość odzysku równą 67%.



Rys. 29. Zależność pomiędzy aktywnościami ^{154}Eu bezpośrednio mierzonymi w próbkach ściółek leśnych [Mietelski, 1994], oraz mierzonymi w wydzielonych z nich frakcjach ziem rzadkich [Mietelski i Wąs, 1997].

Wyznaczone stężenia aktywności izotopów kiuru i europu były ze sobą silnie skorelowane, $R^2=0.76$ (R - współczynnik korelacji Pearsona) przy poziomie istotności $p<0.05$ (rys. 30a). Potwierdza to hipotezę o ich wspólnym pochodzeniu z opadu czarnobylskiego. Średnia wartość stosunku aktywności $^{154}\text{Eu}/^{243+244}\text{Cm}$ (na 1.09.1991 – umowny dzień poboru próbek), poprawiona na średni odzysk ^{154}Eu , równa jest 8.7. Stężenia izotopów kiuru są dobrze skorelowane również z aktywnością czarnobylskiego ^{238}Pu wyznaczoną wcześniej, $R^2=0.61$, $p<0.05$ (rys. 30b). Średnia wartość stosunku aktywności $^{243+244}\text{Cm}/^{238}\text{Pu}$ (rozumiana jako współczynniki nachylenia prostej korelacyjnej) wynosi 0.16. Wielkość ta leży pomiędzy wartościami tego stosunku uzyskanymi w „gorących cząstkach” [Broda i inni, 1989], gdzie wynosił 0.40 i bezpośrednio w czarnobylskim opadzie w Niemczech, gdzie uzyskano wartość ≤ 0.10 . [Bunzl i Kracke, 1990]

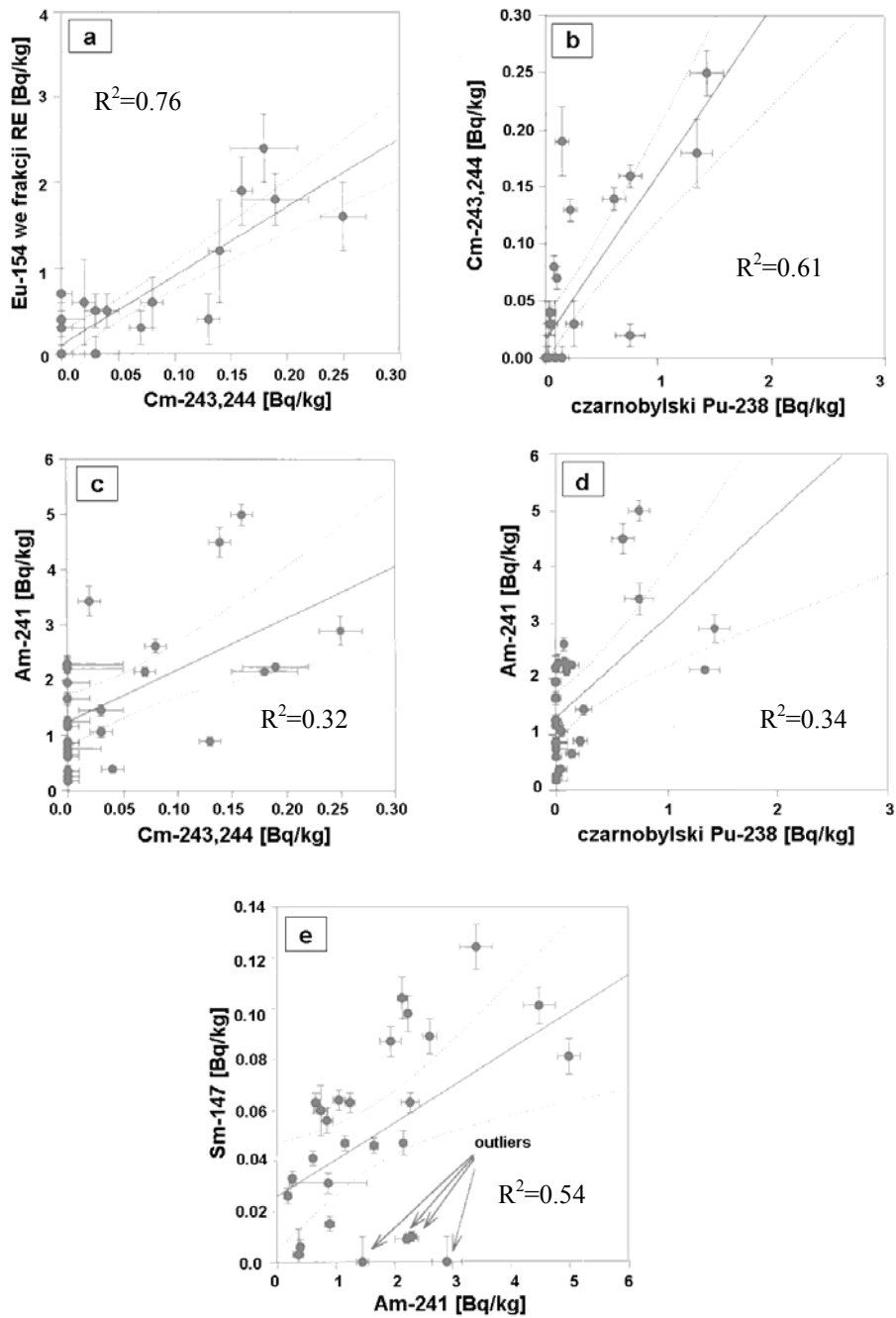
Stężenia aktywności ^{241}Am są słabo skorelowane z aktywnościami izotopów kiuru ($R^2=0.32$, $p<0.05$, rys 30c) oraz ^{238}Pu ($R^2=0.34$, $p<0.05$, rys. 30d). Na obu rysunkach proste korelacyjne przecinają oś rzędnych przy wyraźnie dodatnich wartościach. Oba te fakty sugerują istotną obecność w próbkach ^{241}Am z opadu globalnego, jego średnie stężenie aktywności oceniono [Mietelski i Wąs, 1997] na 1.25 Bq/kg. Wynik ten jest bardzo zbliżony do wartości 1.3 Bq/kg uzyskanej we wstępnej pracy [Mietelski i inni, 1993] dla średniego stężenia aktywności ^{241}Am w ściółkach leśnych z południowej Polski. Z nachylenia prostych korelacyjnych można wyznaczyć wartości średnie stosunków aktywności równe 9.4 dla $^{241}\text{Am}/^{243+244}\text{Cm}$ oraz 1.8 dla $^{241}\text{Am}/^{238}\text{Pu}$. Otrzymane stosunki aktywności zestawiono w tabeli 14.

Tabela 14. Wartości stosunków aktywności izotopów Am, Pu [Mietelski i Wąs, 1997] uzyskane metodą spektrometrii alfa. Obliczenia na dzień 1.09.1991 (moment poboru próbek) .

Stosunek aktywność			
$\frac{^{241}\text{Am}}{^{238}\text{Pu}}$	$\frac{^{241}\text{Am}}{^{243+244}\text{Cm}}$	$\frac{^{243+244}\text{Cm}}{^{238}\text{Pu}}$	$\frac{^{154}\text{Eu}}{^{243+244}\text{Cm}}$
1.8	9.4	0.16	8.7

Stwierdzono słabą korelację ($R^2=0.25$, $p<0.05$, rys. 30e) pomiędzy ^{147}Sm a ^{241}Am . Odrzucenie czterech punktów wyraźnie odstających od pozostałych znacząco podnosi poziom korelacji aż do $R^2=0.54$, $p<0.05$. Wydaje się, że korelacje te odzwierciedlają jedynie zbliżone

własności migracji, sorpcji i desorpcji Am i Sm w ściółce, a nie, jak już wspomniano, ich wspólne pochodzenie.



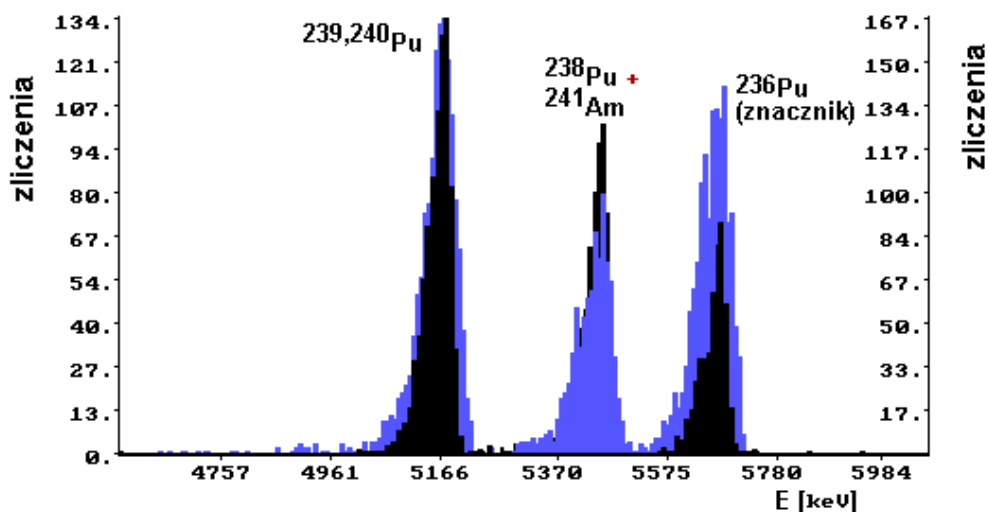
Rys. 30. Zależności pomiędzy aktywnościami $^{243,244}\text{Cm}$, ^{154}Eu , ^{241}Am , ^{238}Pu , ^{147}Sm w próbkach ściółki leśnej z 1991 roku [Mietelski i Wąs, 1997], R^2 – kwadrat współczynnika korelacji Pearsona.

III.1.3. ^{241}Pu w ściółce leśnej

Biorąc pod uwagę wysoką wartość stosunku aktywności $^{241}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ w rdzeniu reaktora bloku IV elektrowni w Czarnobylu w chwili katastrofy [IAEA 1986], obserwowaną w opadzie czarnobylskim w różnych krajach [Bunzl i Kracke, 1990; Paatero i inni, 1994; Buzinny i inni, 1996; Irlweck i Wicke, 1998], wynoszącą wg różnych autorów od 20 do 100, wyniki analiz zawartości alfa-promieniotwórczych izotopów plutonu sugerowały możliwość depozycji ^{241}Pu na poziomie sięgającym 2 kBq/m^2 . Podobne aktywności opad ^{241}Pu spowodowałyby wzrost aktywności ^{241}Am w połowie XXI w do poziomu 70 Bq/m^2 . Głównym celem opisanych w dalszej części pracy pomiarów ^{241}Pu była weryfikacja tych przewidywań i uściślenie wartości występujących stosunków aktywności.

Do pomiarów aktywności ^{241}Pu wykorzystano opisane wcześniej źródła alfa spektrometryczne wykonane techniką współstrącania z NdF_3 zawierające pluton wydzielony z próbek ściółek leśnych [Mietelski, Dorda i Wąs, 1999]. Pomiarów wykonano dwoma metodami: (I) poprzez ocenę narośnięcia aktywności ^{241}Am w alfa-spektrometrycznych źródłach plutonu oraz (II) bezpośrednio, z wykorzystaniem spektrometru z ciekłym scyntylatorem, wykonując pomiary po rozpuszczeniu i następnie oczyszczeniu źródeł z Am i innych produktów rozpadu izotopów Pu.

Prace radiochemiczne i pomiary alfa spektrometryczne wykonano w IFJ, pomiary ciekłoscyntylacyjne wykonano w Instytucie Fizyki Uniwersytetu Śląskiego w Katowicach (nie było jeszcze wówczas, czyli w 1998 roku, takiego spektrometru w IFJ).



Rys. 31. Porównanie dwóch widm promieniowania alfa tego samego źródła (A_1-186). Granatowe widmo (i prawa skala osi rzędnych) odnosi się do pomiaru przeprowadzonego w dniach 21-22.12.1994, czarne widmo (i skala osi rzędnych po lewej stronie) odnoszą się do pomiaru powtórnego w dniach 23-25.06.1997 [Mietelski, Dorda i Wąs, 1999].

Metoda I:

Pomiędzy październikiem 1997 a marcem 1998 wykonano ponowne pomiary 36 źródeł alfa spektrometrycznych zawierających pluton wydzielony ze ściółek leśnych. Wykorzystywano spektrometr Silena AlphaQuattro. Cztery pozostałe źródła (pow. „23” i „120”) rozpuszczono już do pomiarów ciekło-scyntylacyjnych zanim zdecydowano się na pomiar opisywaną tu metodą. Analizę widm prowadzono z wykorzystaniem programu ALF. Widma porównywano z widmami tych samych próbek uzyskanymi od grudnia 1993 do stycznia 1995 za pomocą spektrometru Canberra 7401. Czas pomiędzy dwoma pomiarami wynosił od 917 do 1510 dni (tabela 15). Porównywano zmianę stosunku liczby zliczeń w linii 5.49 keV (^{238}Pu) spowodowaną narośnięciem ^{241}Am (5.49 keV) względem linii 5.15 MeV ($^{239+240}\text{Pu}$). Uwzględniano poprawkę na udział linii 5.42 MeV z ^{228}Th (pochodzącego z

rozpadu znacznika ^{236}Pu). Poprawka ta wynosiła od 1.23% do 3.66% liczby zliczeń w linii 5.7 MeV ^{236}Pu . Na rysunku 31 przedstawiono zestawienie porównywanych dwóch widm alfa tej samej próbki. Aktywność ^{241}Pu obliczano korzystając ze wzoru:

$$A_{241} = A_{239,240} \left(\frac{N_{5.5\text{MeV}(98)} - N_{\text{Th}228}}{N_{5.15\text{MeV}(98)}} - \frac{N_{5.5\text{MeV}(94)}}{N_{5.15\text{MeV}(94)}} \right) \frac{1}{C_{\text{Pu}} \cdot C_{\text{Am}}} \quad \{25\}$$

gdzie: A_{241} i $A_{239,240}$ zdefiniowane jak we wzorze {21}, $N_{5.5\text{MeV}(98)}$ i $N_{5.15\text{MeV}(98)}$ to poprawione na tło powierzchni linii widmowych odpowiednio 5.49 MeV i 5.15 MeV w 1998 roku, analogiczne wielkości z indeksem ('94) to liczby zliczeń w pomiarach prowadzonych w latach 1993-95, $N_{\text{Th}228}$ to wynikająca z rozpadu ^{236}Pu liczba zliczeń w linii ^{228}Th wnosząca udział do liczby zliczeń w linii 5.49MeV, $C_{\text{Pu}} = \exp(-\lambda_{\text{Pu}} t_o)$ to czynnik poprawki na rozpad ^{241}Pu dla t_o – upływu czasu pomiędzy dniem katastrofy czarnobylskiej a dniem przygotowania źródła (wartości od 0.657 do 0.695), C_{Am} , wyrażone wzorem:

$$C_{\text{Am}} = \frac{A_{\text{Am}}}{A_{241}} = \frac{\lambda_{\text{Am}}}{\lambda_{\text{Pu}} - \lambda_{\text{Am}}} \{ \exp(-\lambda_{\text{Pu}} t) - \exp(-\lambda_{\text{Am}} t) \} \quad \{26\}$$

to czynnik opisujący narastanie ^{241}Am pomiędzy pomiarami (od $3.78 \cdot 10^{-3}$ dla $t=917$ dni do $5.99 \cdot 10^{-3}$ dla $t=1510$ dni), A_{Am} – aktywność ^{241}Am , λ_{Pu} , λ_{Am} – stałe rozpadu odpowiednio: ^{241}Pu i ^{241}Am .

Jako granicę oznaczalności ^{241}Pu przyjęto różnicę trzech odchyłeń standardowych wartości stosunku liczby zliczeń w liniach widmowych $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ w pomiarze z lat 1993-95. Wartość tego stosunku odgrywa rolę tła w tej metodzie. Stąd, najmniejszą oznaczalną aktywność (ang.: *minimum detectable activity - MDA*) określano wzorem:

$$MDA_{\alpha} = 3A_{239,240} \left(\frac{N_{5.5\text{MeV}(94)}}{N_{5.15\text{MeV}(94)}} \sqrt{(N_{5.5\text{MeV}(94)})^{-1} + (N_{5.15\text{MeV}(94)})^{-1}} \right) \frac{1}{C_{\text{Pu}} \cdot C_{\text{Am}}} \quad \{27\}$$

gdzie pozostałe oznaczenia jak w równaniu {25}.

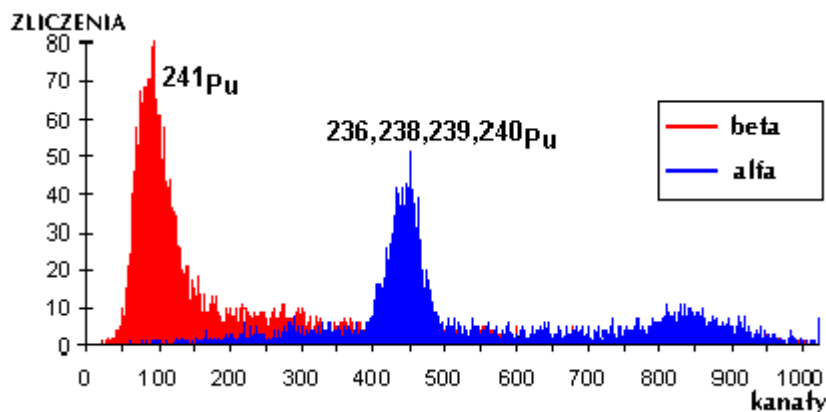
Wartości MDA_{α} dla ^{241}Pu zależą głównie od czasu pomiaru i aktywności źródeł, wahają się od 10 Bq/kg s.m. do 90 Bq/kg s.m.

Metoda II.

Metoda ta polega na pomiarze aktywności ^{241}Pu bezpośrednio poprzez rejestrację widma promieniowania beta w spektrometrze z ciekłym scyntylatorem. W tym samym spektrometrze symultanicznie rejestrowane jest widmo promieniowania alfa służące do wyznaczenia wydajności chemicznej. Źródła przeprowadzone musiały być do roztworu. Wykorzystane tu źródła składały się z mikrokrystalików NdF_3 (o średnicach rzędu 100 nm) zatrzymanych na filtrze membranowym, całość przyklejona była do podkładki miedzianej. Szczegółowy opis stosowanej tu procedury znajduje się w Aneksie 2. Po rozpuszczeniu pluton z próbek był oczyszczany z produktów rozpadów i innych zanieczyszczeń na kolumnach wypełnionych anionitem DOWEX-1x8. Po wymyciu z kolumn i odparowaniu do 2 ml roztwór zawierający Pu były starannie przenoszone do dwudziestomililitrowych, plastikowych naczynek scyntylacyjnych i mieszany z ciekłym scyntylatorem Wallac HiSafeTM 3. Pomiary przeprowadzono w Instytucie Fizyki Uniwersytetu Śląskiego na spektrometrze ciepłoscyntylacyjnym Wallac 1414-002 WinSpectral α/β . Model ten różni się od Wallac 1414-003, który znajduje się od 1999 w IFJ, za pomocą którego wykonywano dalsze badania opisane w pracy, jedynie brakiem w komorze pomiarowej aktywnej, antykoincydencyjnej osłony zawierającej scyntylator plastikowy i dwa fotopowielacze. Oba modele spektrometru wyposażone są w układ analizy kształtu impulsu pozwalający na rozróżnienie sygnału od rejestracji cząstki alfa od cząstki beta PSA (ang. *Pulse Shape Analyses*) w oparciu o czas trwania scyntylacji [Oikari i inni, 1987]. Ze względu na zbliżone energie maksymalne cząstek beta emitowanych w rozpadach ^{241}Pu (20,8 keV) i ^3H (18,6 keV) w ciepłoscyntylacyjnych pomiarach aktywności ^{241}Pu wykorzystuje się bogate oprogramowanie

wspomagające pomiary aktywności trytu dostarczone przez producenta, m.in. uwzględnia się w ten sposób automatycznie wszelkie poprawki na gaszenie chemiczne i kolorowe [Parus i inni, 1993; Buzinny i inni, 1996]. W oparciu o programy biblioteczne spektrometru obliczana jest końcowa wydajność rejestracji. Zastosowano wszystkie powyższe udogodnienia pomiarowe. Początkowo pomiary prowadzono z czasem pomiaru 180 min. Próbkę nisko aktywne ponownie mierzono stosując czas 600 min. Parametr PSA rozdziału widm alfa i beta dobrano empirycznie badając widma ^{244}Cm i ^{148}Gd .

Średnia efektywność rejestracji widma beta wynosiła 13.6% z odchyleniem standardowym 3.2%. Dla widma alfa przyjęto efektywność równą 100% i zweryfikowano ją pomiarem znanej aktywności ^{244}Cm . Przykładowe widma promieniowania beta i alfa dla próbki A₁-120 przedstawiono na rysunku 32.



Rys. 32. Widmo promieniowania alfa i beta rozpuszczonego i oczyszczonego alfa-spektrometrycznego źródła frakcji plutonowej z próbki A₁-120

Granica oznaczalności dla pomiarów trwających 600 min. wyznaczony zgodnie z klasyczną formułą Currie (Currie, 1968) wynosił 90 mBq dla ^{241}Pu i 5 mBq dla sumy emiterów alfa $^{236,238,239,240}\text{Pu}$. Dla próbek o masie 20 g oznacza to minimalne oznaczalne stężenie ^{241}Pu równe 5 Bq/kg. Zdolność rozdzielcza spektrometru ciekłoscyntylacyjnego nie pozwala na rozdział linii widmowych promieniowania alfa ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$ i ^{236}Pu . Jednak po pomiarach próbek na spektrometrze promieniowania alfa z detektorem półprzewodnikowym wszystkie te aktywności były znane, dlatego sumaryczna aktywność alfa mogła służyć do wyznaczenia odzysku (wydajności radiochemicznej) całej procedury rozpuszczenia i oczyszczenia próbek zgodnie ze wzorem:

$$Y_{LSC} = \frac{A_{\alpha LSC}}{\{(A_{238} + A_{239,240}) \cdot m + A_{236}\} \cdot Y_{\alpha}} \quad \{28\}$$

gdzie: Y_{LSC} – odzysk Pu (wydajność radiochemiczna procedury rozpuszczenia i oczyszczenia), $A_{\alpha LSC}$ – całkowita aktywność alfa wyznaczona w pomiarze ciekłoscyntylacyjnym, A_{238} i $A_{239,240}$ – jak dotychczas, m – masa próbki, A_{236} – dodana aktywność znacznika ^{236}Pu (poprawiona na rozpad), Y_{α} – odzysk dla źródła alfa spektrometrycznego.

Całkowity odzysk wyraża się iloczynem:

$$Y = Y_{LSC} \cdot Y_{\alpha} \quad \{29\}$$

Średnio odzysk Y wynosił 0.60 z odchyleniem standardowym 0.22. Średnia wartość Y_{LSC} wynosiła 0.82.

Procedurę kalibracji zweryfikowano już po zakończeniu właściwych pomiarów, z chwilą otrzymania roztworu standardowego NBS SRM 947 produkcji NIST (USA), zawierającego izotopy Pu w proporcjach określonych atestem. Roztwór analizowano oczyszczając i wydzielając pluton w standardowej procedurze. Obliczony na dzień pomiaru (4 listopad 1998) z certyfikowanej wartości stosunek aktywności $^{241}\text{Pu}/^{238+239+240+242}\text{Pu}$ wynosił 9.80 ± 0.10 , otrzymano 9.44 ± 0.12 , przy wydajności ocenionej na 18%. Względna rozbieżność wynosiła 4%.

Tabela 15. Wyniki oznaczeń aktywności ^{241}Pu uzyskane na podstawie narastania aktywności ^{241}Am w źródłach alfa-spektrometrycznych frakcji plutonowych otrzymanych z próbek ściółek leśnych oraz wartości stosunków aktywności izotopów Pu [Mietelski, Dorda i Wąs, 1999].

Kod próbki	Region (rys. 21)	Czas pomiędzy pom. aktywności alfa (d)	^{241}Pu (Bq/kg s.m \pm 1 σ) 1.05.1986	$^{241}\text{Pu}/^{238,239,240}\text{Pu}$ 1.05.1986 \pm 1 σ	$^{241}\text{Pu}_{\text{Ch}}/A_{\text{Ch}}$ 1.05.1986 \pm 1 σ
A ₀ -131	I	1354	185 \pm 37	75 \pm 17	210 \pm 100
A ₁ -131		1021	254 \pm 43	33 \pm 6	62 \pm 17
A ₀ -142		1272	147 \pm 25	27 \pm 5	43 \pm 12
A ₁ -142		1402	128 \pm 34	24 \pm 7	114 \pm 60
A ₀ -224		1024	213 \pm 34	42 \pm 7	68 \pm 15
A ₁ -224		1015	<90	N.D.	N.D.
A ₀ -90	II	1343	106 \pm 33	28 \pm 10	46 \pm 17
A ₁ -90		1348	96 \pm 16	19 \pm 3	120 \pm 38
A ₀ -161		1381	<25	N.D.	N.D.
A ₁ -161		1338	63 \pm 13	15 \pm 4	71 \pm 27
A ₀ -179		1466	71 \pm 16	40 \pm 9	83 \pm 25
A ₁ -179		1465	<45	N.D.	N.D.
A ₀ -186		1037	<23	N.D.	N.D.
A ₁ -186		917	208 \pm 44	58 \pm 13	93 \pm 24
A _{0i} -248		1448	<29	N.D.	N.D.
A _{0h} -248		1435	21 \pm 9	10 \pm 4	42 \pm 35
A ₁ -248		1360	<12	N.D.	N.D.
A _{0i} -157		III	1529	<55	N.D.
A _{0h} -157	1473		<30	N.D.	N.D.
A ₁ -157	1473		<53	N.D.	N.D.
A ₀ -65	1301		<50	N.D.	N.D.
A ₁ -65	1385		63 \pm 21	11 \pm 3	360 \pm 350 [#]
A ₀ -30	IV	1340	30 \pm 5	36 \pm 8	N.D.
A ₁ -30		1339	23 \pm 7	6 \pm 2	N.D.
A ₀ -189		1406	20 \pm 6	6 \pm 2	60 \pm 65 [#]
A ₁ -189		1414	<21	N.D.	N.D.
A ₀ -204		1406	<10	N.D.	N.D.
A ₁ -204		1410	<31	N.D.	N.D.
A ₀ -13	V	1423	<29	N.D.	N.D.
A ₁ -13		1466	<24	N.D.	N.D.
A ₀ -135		1499	<56	N.D.	N.D.
A ₁ -135		1510	<50	N.D.	N.D.
A ₀ -258		1453	<10	N.D.	N.D.
A ₁ -258		1375	25 \pm 6	8 \pm 2	N.D.
A ₀ -10		1364	<100	N.D.	N.D.
A ₁ -10		1366	<50	N.D.	N.D.

- wynik nie uwzględniony w obliczeniach wartości średnich z racji za dużej niepewności względnych

wartość po symbolu „<” to MDA

N.D. – nie oznaczano

Tabela 16. Wyniki oznaczeń ^{241}Pu oraz stosunków aktywności izotopów Pu uzyskane za pomocą pomiarów z wykorzystaniem spektrometru ciekłoscyntylacyjnego dla próbek ściółek leśnych [Mietelski, Dorda i Wąs, 1999].

Kod próbki	Odzysk $Y(Y_\alpha)$ (%)	^{241}Pu , 1.05.1986 (Bq/kg s.m. $\pm 1\sigma$)	$^{241}\text{Pu}/^{238,239,240}\text{Pu}$ 1.05. 1986 $\pm 1\sigma$	$^{241}\text{Pu}_{\text{Ch}}/\text{A}_{\text{Ch}}$ 1.05. 1986
A ₀ -23	96±11 (89)	197±22	45±6	93±21
A ₁ -23	51±6 (71)	160±19	44±7	93±23
A ₀ -120	55±6 (73)	256±28	46±7	77±15
A ₁ -120	48±5 (80)	262±26	28±1	71±13
A ₀ -131	68±8 (75)	135±16	55±9	155±70
A ₁ -131	38±4 (69)	284±31	36±5	71±15
A ₀ -142	28±3 (37)	236±28	43±6	70±15
A ₁ -142	65±7 (60)	144±17	26±5	127±50
A ₀ -224	46±4 (59)	228±23	44±6	72±12
A ₁ -224	45±6 (68)	74±20	11±3	25±14
A ₀ -90	75±8 (70)	158±19	43±9	70±15
A ₁ -90	81±9 (81)	80±10	16±2	97±32
A ₀ -161	43±7 (87)	64±11	94±20	145±58
A ₁ -161	94±10 (89)	65±8	15±2	71±20
A ₀ -179	54±6 (65)	87±10	49±7	102±25
A ₁ -179	57±9 (80)	25±5	17±3	N.D.
A ₀ -186	65±35 (65)	22±12	200±155 [#]	310±560 [#]
A ₁ -186	62±7 (80)	148±18	41±8	66±13
A _{0i} -248	61±9 (67)	55±8	60±12	111±42
A _{0h} -248	64±7 (83)	35±5	16±3	83±35
A ₁ -248	83±10 (86)	30±4	34±6	1050±800 [#]
A _{0i} -157	30±40 (42)	< 6	N.D.	N.D.
A _{0h} -157	36±13 (75)	22±9	13±7	N.D.
A ₁ -157	54±6 (78)	23±4	13±3	N.D.
A ₀ -65	45±7 (84)	22±5	15±4	300±750 [#]
A ₁ -65	81±9 (85)	53±6	9±3	260±350 [#]
A ₀ -30	85±11 (89)	13±2	16±3	N.D.
A ₁ -30	14±2 (49)	80±11	22±4	N.D.
A ₀ -189	24±2 (98)	34±5	10±2	170±100 [#]
A ₁ -189	87±9 (87)	30±5	15±3	N.D.
A ₀ -204	91±11 (98)	7±2	9±2	53±50 [#]
A ₁ -204	25±3 (38)	41±7	22±5	150±100 [#]
A ₀ -13	43±11 (52)	< 7	N.D.	N.D.
A ₁ -13	63±8 (74)	23±4	21±4	48±20
A ₀ -135	68±10 (71)	26±4	15±3	N.D.
A ₁ -135	70± 8(79)	27±4	8±3	N.D.
A ₀ -258	92±24 (92)	10±3	63±24	140±120 [#]
A ₁ -258	95±12 (81)	20±3	6±1	N.D.
A ₀ -10	Y.N.D.	<9	N.D.	N.D.
A ₁ -10	Y.N.D.	< 8	N.D.	N.D.

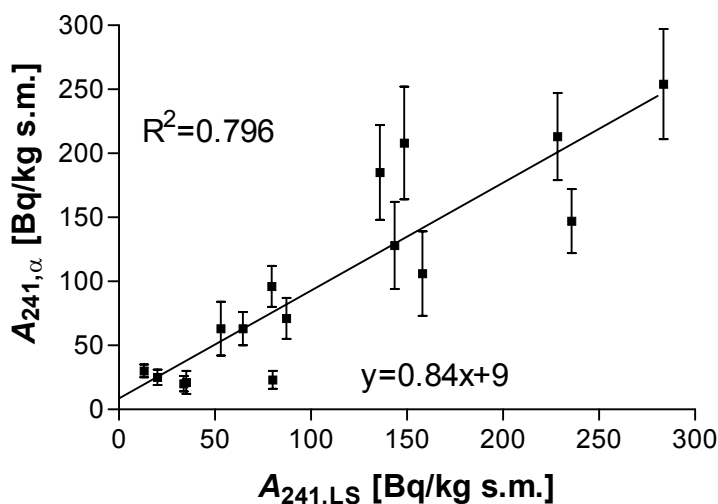
- wynik nie uwzględniony w obliczeniach wartości średnich z racji za dużej niepewności względnych, Y_α odzysk dla pomiaru alfa spektrometrycznego (Tabela 15), symbol „<” poprzedza najmniejsze mierzone aktywności w danym przypadku,

N.D. – nie oznaczano,

Y.N.D. brak danych dla wyznaczenia odzysku (aktywność alfa w pomiarze LSC poniżej granicy wykrywalności).

Wyniki oceny aktywności ^{241}Pu otrzymane metodą I (narośnięcia aktywności ^{241}Am) przedstawiono w tabeli 15, a te uzyskane dzięki pomiarom ciekłoscyntylacyjnym (metodą II) tabeli 16. Wszystkie podane aktywności obliczone są na dzień 1 maj 1986 – a więc odnoszą się do daty katastrofy czarnobylskiej. Wyniki uzyskane oboma metodami są ze sobą zgodne. Metoda I charakteryzuje się wyższymi limitami detekcji i większymi błędami pomiarowymi. Tylko 16 wyników uzyskanych tą metodą przekracza limit detekcji, podczas gdy w pomiarach metodą II tylko 4 próbki mają niemierzalne (tj. poniżej granicy oznaczalności) aktywności ^{241}Pu . Podana w tabeli 16 ocena niepewności pomiaru odnosi się do błędu wynikającego jedynie ze statystyki pomiaru. Rzeczywisty błąd może być większy, gdyż zaniedbano niepewność systematyczną wnoszoną przez automatyczną ocenę wydajności rejestracji promieniowania beta, obliczaną przez programy biblioteczne spektrometru.

Pomiary bezpośrednie, ciekłoscyntylacyjne, charakteryzowały się mniejszymi błędami i niższymi limitami detekcji, a ich precyzja wydaje się być wyższa od precyzji pomiarów pośrednich, prowadzonych poprzez narośnięcie ^{241}Am . Wykres korelacyjny dla 16 próbek mierzalnych oboma metodami przedstawiono na rysunku 33. Kwadrat współczynnika korelacji Pearsona (R^2) równy jest 0.796 (poziom istotności $p < 0.0001$), a więc korelacja jest wysoka. Jednocześnie współczynnik kierunkowy prostej korelacyjnej jest mniejszy od 1 (wynosi 0.84 ± 0.11), co sugeruje pewien systematyczny błąd niedoszacowania aktywności uzyskanej pierwszą metodą względem drugiej metody. Jest on rzędu 10%. Czynniki stały prostej korelacyjnej jest praktycznie równy 0, wynosi (-9 ± 16) Bq/kg.



Rys. 33. Aktywność ^{241}Pu wyznaczona alfa-spektrometrycznie poprzez narastanie ^{241}Am ($A_{241,\alpha}$) w funkcji aktywności ^{241}Pu wyznaczonej w pomiarach ciekłoscyntylacyjnych ($A_{241,LS}$); uwzględniono 16 próbek dla których wyniki uzyskano obu metodami były dostępne [Mietelski, Dorda i Wąs, 1999].

Wszystkie próbki z obszaru „I” na rysunku 21 (skrajnie północno-wschodnia Polska) wykazują podniesiony poziom aktywności ^{241}Pu . Zakres zmienności aktywności tego izotopu na tym obszarze mieści się w granicach od <90 Bq/kg s.m. do 254 ± 43 Bq/kg s.m. (metoda I) lub od 74 ± 20 Bq/kg s.m. do 284 ± 31 Bq/kg s.m. (metoda II). W pomiarach prowadzonych obu metodami najwyższą aktywność zaobserwowano dla tej samej próbki A₁-131 (warstwa humusowa ściółki leśnej, w pobliżu miejscowości Lipsk, południowo-wschodni skraj Puszczy Augustowskiej), a minimalną (na tym obszarze) dla próbki A₁-224. Średnia aktywność dla pięciu próbek z tych terenów mierzonych metodą I wynosiła 186 Bq/kg s.m. (przy błędzie średnim 35 Bq/kg s.m.) podczas gdy dla dziesięciu próbek mierzonych metodą 2 średnia wynosiła 198 Bq/kg s.m. z odchyleniem standardowym (σ) równym 67 Bq/kg s.m. i średnim błędem 23 Bq/kg s.m..

Na pozostałym obszarze Polski wschodniej (obszar II na rys. 21) ocenione aktywności wahają się od <12 Bq/kg s.m. do 208 ± 44 Bq/kg s.m. (metoda I) czy też od 25 ± 5 Bq/kg s.m. do 158 ± 19 Bq/kg

s.m. (metoda II). Około połowa próbek z tych terenów miała aktywności mniejsze od granic oznaczalności dla metody I, tak że trudno jest tu mówić o parametrach statystycznych charakteryzujących ocenione tą metodą aktywności. Natomiast w przypadku metody II można je podać, średnia wynosi 70 Bq/kg s.m., $\sigma = 67$ Bq/kg s.m.. Dla próbek z pozostałych obszarów (III, IV i V na rysunku 21) metodą II otrzymano aktywności z zakresu <6 do 80 ± 11 Bq/kg s.m., ze średnią 22 Bq/kg s.m., $\sigma = 20$ Bq/kg s.m.. Dla tylko 5 próbek z tych terenów możliwa była ocena aktywności metodą I, wynoszą one od <10 Bq/kg s.m. do 63 ± 21 Bq/kg. Parametry statystyczne nie mogą być tu podane ze względu na małą liczbę wyników powyżej granicy oznaczalności.

Tabele 15 i 16 zawierają również obliczone stosunki aktywności ^{241}Pu do innych izotopów plutonu. Średni stosunek aktywności ^{241}Pu do sumy aktywności alfa Pu (łącznie $^{238,239,240}\text{Pu}$) obliczony dla wszystkich zmierzonych aktywności za pomocą danej metody wynosi dla metody pierwszej 27 ($\sigma = 19$, $N = 16$) oraz dla drugiej metody 28 ($\sigma = 19$, $N = 35$). Dla samej składowej czarnobylskiej obliczony średni stosunek aktywności of ^{241}Pu do $^{239,240}\text{Pu}$ wynosi 86 ± 47 (11 próbek, I metoda) czy też 87 ± 31 (17 próbek, II metoda). Liczba próbek służących do przeprowadzenia tych obliczeń jest mniejsza od wszystkich, dla których oznaczono aktywności, gdyż odrzucono tu próbki charakteryzujące się największymi niepewnościami wyznaczenia stosunków aktywności.

Wyniki ocenionej obydwoma metodami depozycji ^{241}Pu , wykorzystujące współczynniki konwersji dla danej powierzchni z pracy [Mietelski, 1994] zestawiono w Tabeli 17. Przedstawiono tam również przewidywania wynikające z obliczonej depozycji ^{241}Pu w 1986 r., a dotyczące aktywności powierzchniowej ^{241}Am w roku 2056, a więc po upływie blisko pięciu okresów połowicznego rozpadu ^{241}Pu . We wszystkich przypadkach, gdy aktywność ^{241}Pu oceniono obiema metodami w kolumnie 4 podano zwykle średnie arytmetyczne aktywności powierzchniowych otrzymanych z obu metod. Maksymalna aktywność powierzchniowa ^{241}Pu (dla przelomu kwietnia i maja 1986) został oceniona na 1.11 ± 0.11 kBq/m² (próbka 120 – nadleśnictwo Płaska w Puszczy Augustowskiej). Jest to suma aktywności w warstwie powierzchniowej i humusowej równych odpowiednio: 0.26 ± 0.03 kBq/m² oraz 0.85 ± 0.10 kBq/m². Odpowiada to depozycji ^{241}Pu pochodzenia czarnobylskiego wynoszącej 1.025 ± 0.110 kBq/m² (kolejno w dwóch analizowanych warstwach ściółki). Aktywność powierzchniowa ^{241}Pu dla większości próbek z terenu Polski z wyjątkiem terenów I (rys. 21) była poniżej 0.3 kBq/m². Tylko kilka próbek z terenów II (rys. 20) wykazywała aktywności rzędu 0.5 kBq/m² (próbki "90" i "186").

Maksymalna depozycja ^{241}Pu z Czarnobyla sięgająca 1 kBq/m² (łącna aktywność w dwóch próbkach z miejsc 23, 120, 131 – wszystkie z Puszczy Augustowskiej) jest ponad dwukrotnie wyższa od maksymalnej depozycji tego izotopu w Finlandii wynoszącej 430 Bq/m² [Paatero i inni, 1994]. Średnie skażenie powierzchni dla północno-wschodnich krańców Polski przekracza trójrotnie średnią dla badanych terenów Ukrainy – z wyłączeniem terenów bezpośrednio wokół reaktora [Buzinny i inni, 1996].

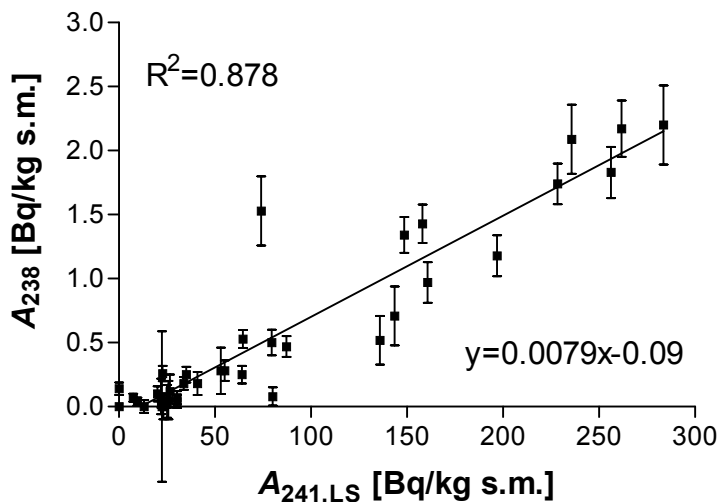
Aktywność ^{241}Pu równa 1 kBq, zdeponowana na powierzchni 1m² prowadzi po swoim rozpadzie (praktycznie po 70 latach) do dodatkowej aktywności ^{241}Am równej 29 Bq/m². Przykładowo, dla miejsca "23" dysponujemy kompletem danych dla oceny przyszłego całkowitego poziomu skażeń amerykańskim. Całkowita depozycja emiterów alfa ($^{238,239,240}\text{Pu}$) obecna w obu analizowanych warstwach ściółki została oceniona na 23.0 ± 2.0 Bq/m², z czego 14.5 ± 1.1 Bq/m² pochodzi z Czarnobyla [Mietelski i Wąs 1995]. Oznacza to, że znaczna część plutonu z globalnego opadu znajduje się w głębszych, nie analizowanych tu warstwach gleby. Aktywność ^{241}Am zmierzona w 1993 wynosiła 5.00 ± 0.19 Bq/kg and 4.5 ± 0.27 Bq/kg w powierzchniowej (A_0) i głębszej (A_1) warstwach ściółki [Mietelski i Wąs, 1997]. Stosując te same współczynniki konwersji do aktywności powierzchniowej jak dla plutonu otrzymujemy stąd 27.7 Bq/m², z czego 9.7 Bq/m² może być wyjaśnione jako pochodzące z rozpadu w ciągu 7 lat (1986-1993) ^{241}Pu o aktywności w 1986 roku wynoszącej 1015 Bq/m² (w tym 970 Bq/m² z Czarnobyla, reszta z opadu globalnego). Składowa ^{241}Am z globalnego opadu, obliczona na podstawie aktywności $^{239,240}\text{Pu}$ wynosi 2.5 Bq/m². W związku z tym początkowa depozycja ^{241}Am z Czarnobyla może być oceniona na 15.5 Bq/m². Po 70 latach pozostanie z tego 13.5 Bq/m². Ponad dwukrotnie więcej (29 Bq/m²) będzie pochodzić wówczas z rozpadu ^{241}Pu przy aktywności w 1986 równej początkowych 970 Bq/m².

Tabela 17. Depozycja ^{241}Pu jej składowa czarnobylska w próbkach ściółek leśnych (ocenione w dwu metodach), oraz przewidywania dla wynikającej stąd przyszłej (rok 2056) aktywności ^{241}Am w danym miejscu [Mietelski, Dorda i Waś, 1999].

Kod próbki	1986 ^{241}Pu aktywność powierzchni ($\text{Bq/m}^2 \pm 1\sigma$)				^{241}Am (Bq/m^2 1σ) 2056	
	Metoda I	Metoda II	średnia	w tym Czarnobyl	z rozpadu ^{241}Pu	w tym Czarnobyl
A ₀ -23	N.M.	195±25		187±27	5.8±0.8	5.6±1.0
A ₁ -23	N.M.	820±120		790±125	24.2±3.6	23.3±4.0
A ₀ -120	N.M.	260±33		255±35	7.6±1.0	7.5±1.1
A ₁ -120	N.M.	850±100		770±105	25.0±3.0	22.6±3.2
A ₀ -131	190±36	140±20	165±29	155±35	4.9±0.9	4.6±1.1
A ₁ -131	700±124	780±100	740±113	710±115	21.9±3.4	21.0±3.4
A ₀ -142	105±19	175±27	140±23	140±25	4.1±0.7	4.1±0.7
A ₁ -142	365±98	405±60	385±81	175±100	11.4±2.4	5.1±3.0
A ₀ -224	235±38	250±30	240±34	235±35	7.2±1.0	7.1±1.1
A ₁ -224	N.D.	470±150		255±160	13.9±7.5	7.5±5.8
A ₀ -90	55±19	85±14	70±17	70±17	2.0±0.5	2.0±0.5
A ₁ -90	390±62	330±50	360±56	64±60	10.7±1.7	1.8±1.6
A ₀ -161	N.D.	58±12		58±12	1.6±0.3	4.0±3
A ₁ -161	150±35	150±22	150±29	0±40	4.4±0.9	0±1.2
A ₀ -179	100±21	120±5	110±150	106±25	3.3±0.4	3.1±0.7
A ₁ -179	N.D.	170±42		F.Z.	5.0±2.3	F.Z.
A ₀ -186	N.D.	22±14		22±14	0.7±0.4	0.6±0.4
A ₁ -186	640±137	450±68	545±108	545±108	16.1±3.2	16.1±3.2
A _{0i} -248	N.D.	103±19		79±31	3.1±0.7	2.3±0.9
A _{0h} -248	50±22	84±13	67±18	12±7	2.0±0.5	0.4±0.2
A ₁ -248	N.D.	280±45		8±6	8.6±1.4	0.2±0.2
A _{0i} -157	N.D.	N.D.	N.D.	F.Z.	N.D.	F.Z.
A _{0h} -157	N.D.	35±16		F.Z.	1.1±0.5	F.Z.
A ₁ -157	N.D.	440±90		F.Z.	6.5±6.3	F.Z.
A ₀ -65	N.D.	24±8		1±2	0.7±0.3	<0.1
A ₁ -65	320±100	260±42	290±77	6±3	8.6±2.3	0.2±0.1
A ₀ -30	32±5	14±4	23±5	F.Z.	0.8±0.2	F.Z.
A ₁ -30	155±48	205±60	180±54	F.Z.	5.3±1.6	F.Z.
A ₀ -189	45±13	74±17	60±15	2±1	1.8±0.5	<0.1
A ₁ -189	N.D.	230±41		F.Z.	7.0±1.3	F.Z.
A ₀ -204	N.D.	31±9		4±2	0.9±0.3	0.1±0.1
A ₁ -204	N.D.	750±150		105±56	10.7±5.6	3.1±1.7
A ₀ -13	N.D.	N.D.		N.D.	N.D.	N.D.
A ₁ -13	N.D.	70±15		39±13	2.1±0.5	1.2±0.4
A ₀ -135	N.D.	23±5		F.Z.	0.7±0.2	F.Z.
A ₁ -135	N.D.	96±16		F.Z.	2.9±0.5	F.Z.
A ₀ -258	N.D.	8±3		5±4	0.2±0.1	0.1±0.1
A ₁ -258	130±31	100±15	115±24	F.Z.	3.4±0.7	F.Z.
A ₀ -10	N.D.	N.D.	N.D.	F.Z.	N.D.	F.Z.
A ₁ -10	N.D.	N.D.	N.D.	F.Z.	N.D.	F.Z.

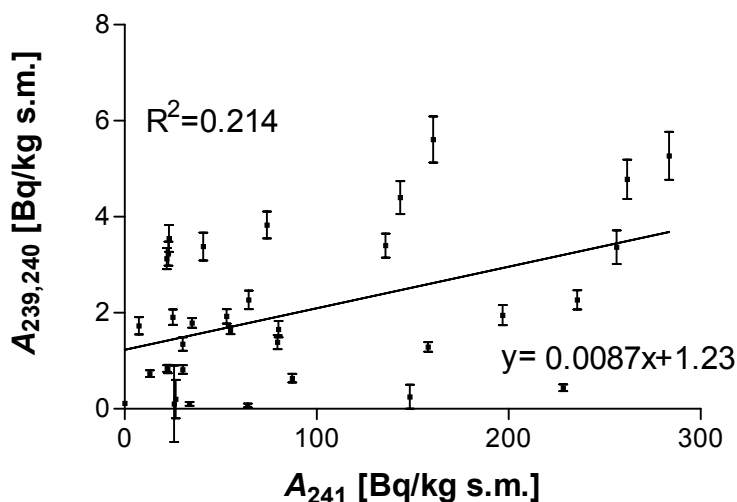
Średnia obliczone gdy wyniki z obu metod były dostępne,
 N.M. – brak danych,
 N.D. – nie wyznaczono (poniżej granicy oznaczalności),
 F.Z.- udział czarnobylski $F=0$.

Łącznie prowadzi to do 42.5 Bq/m^2 ^{241}Pu pochodzenia czarnobylskiego w 2056. Jest to prawie trzykrotnie więcej niż aktywność alfa promieniotwórczych emiterów plutonu pochodzenia czarnobylskiego w tych samych warstwach. Dla porównania średnia depozycja ^{241}Pu z globalnego opadu dla szerokości geograficznych Polski, po całkowitym rozpadzie ^{241}Pu oceniana jest na 25 Bq/m^2 (UNSCEAR, 1982).



Rys. 34. Wykres zależności aktywności ^{241}Pu wyznaczonej w pomiarach ciekłoscyntylacyjnych ($A_{241,LS}$) i ^{238}Pu wyznaczonej dla tych samych próbek za pomocą spektrometrii promieniowania alfa (A_{238}) [Mietelski, Dorda i Waś, 1999].

Stwierdzono wysoką korelację ($R^2=0.878$, $p<0.0001$) pomiędzy aktywnościami ^{241}Pu i ^{238}Pu (rys. 34), i bardzo słabą korelację pomiędzy ^{241}Pu i $^{239+240}\text{Pu}$ ($R^2=0.214$, $p=0.0051$, rys. 35). Łatwo to zrozumieć, gdyż katastrofa czarnobylska jest głównym źródłem zarówno ^{241}Pu jak i ^{238}Pu , podczas gdy składowa z opadu globalnego stanowi dominującą część aktywności $^{239+240}\text{Pu}$ dla większości próbek.



Rys. 35. Wykres zależności aktywności ^{241}Pu wyznaczonej w pomiarach ciekłoscyntylacyjnych ($A_{241,LS}$) i $^{239+240}\text{Pu}$ wyznaczonej dla tych samych próbek za pomocą spektrometrii promieniowania alfa ($A_{239,240}$) [Mietelski, Dorda i Waś, 1999].

Stosunek aktywności ^{241}Pu do innych izotopów Pu w opadzie czarnobylskim przedstawiano na dwa sposoby: bądź jako stosunek względem całkowitej aktywności alfa plutonu, tj. w praktyce

sumy aktywności $^{238+239+240}\text{Pu}$, bądź tylko względem $^{239+240}\text{Pu}$. Można też było spotkać oceny względem nie tylko składowej czarnobylskiej, ale sumarycznej aktywności Pu czarnobylskiego i z globalnego opadu. Uzyskane tu średnie wartości stosunku aktywności ^{241}Pu do $^{239+240}\text{Pu}$ (na dzień 1.05.1986) wynoszące 86 ± 47 lub 87 ± 31 , odpowiednio dla pierwszej i drugiej metody są nieznacznie mniejsze od wartości otrzymanej w Finlandii równej 94.8 [Paatero i inni, 1994] i równają się wartości szacowanej dla rdzenia reaktora [IAEA, 1986] wynoszącej 83. Wartość tego stosunku zmierzona w kwietniu i maju 1986 w filtrach powietrza z Austrii [Irlweck i Wicke, 1998] była mniejsza, zmieniała się od 31.6 do 74.6 ze średnią wynoszącą 57.8 ± 3.7 .

Z otrzymanych danych można również obliczyć wartości stosunków aktywności ^{241}Pu do całkowitej aktywności alfa Pu ($^{238+239+240}\text{Pu}$), by porównać je z kolejnymi publikowanymi wynikami. Przyjmując wartość stosunku aktywności $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ równy 0.55 [Mietelski i Wąs, 1995] należy podzielić podane wyżej obecne wyniki stosunku aktywności przez 1.55 by otrzymać wartość stosunku aktywności $^{241}\text{Pu}/^{238,239,240}\text{Pu}$. Otrzymuje się wartości 56 ± 30 (metoda I) lub 56 ± 20 (metoda II). Wartości te są tylko nieznacznie mniejsze od znalezionych w „gorących cząstkach” na Ukrainie, wynoszących 60.2 (średnia), zawartych od 54.7 do 73.1 [Buzinny i inni, 1996]. Również na Ukrainie, lecz w opadzie pobranym na roślinach, stwierdzono znacznie mniejsze wartości tego stosunku zawarte w granicach od 10.2 do 40.7 ze średnią 28 [Buzinny i inni, 1996]. Małą wartość stosunku aktywności ^{241}Pu do $^{239,240}\text{Pu}$ wynoszącą 26 ± 4 zaobserwowano dla traw skażonych opadem czarnobylskim w Niemczech [Bunzl i Kracke, 1990], wartość ta prowadziła do stosunku $^{241}\text{Pu}/^{238,239,240}\text{Pu}$ równego jedynie 15.7.

Różnice w obserwowanych stosunkach aktywności ^{241}Pu do alfa promieniotwórczych izotopów plutonu w opadzie czarnobylskim są trochę zaskakujące. Gorące cząstki i opad z pierwszych uwolnień (z eksplozji) widoczny w Polsce i Finlandii charakteryzował się wyższymi wartościami tego stosunku, zbliżonymi do oszacowań zawartości rdzenia. Pomiary prowadzone w dalszych odległościach (Austria, Niemcy) oraz nawet próbki roślinne z Ukrainy charakteryzują się niższymi jego wartościami. Wydaje się, że przynajmniej w przypadku próbek roślinnych wyjaśnieniem może być niezerowa aktywność Pu z globalnego opadu (o niskiej względnej zawartości ^{241}Pu) obecna w roślinach dzięki np. poborowi korzeniowemu. Hipoteza taka została sformułowana w pracy [Mietelski, Dorda i Wąs, 1999], ale wymagała doświadczalnego potwierdzenia. Autorzy wspomnianych prac niemieckich i ukraińskich zakładali brak poboru korzeniowego. Założenie takie wynikało z faktu, że badania skażeń plutonem w materiale roślinnym przed katastrofą czarnobylską nie były raczej prowadzone na odpowiednim poziomie czułości. Zagadnieniu obecności plutonu w roślinach dzięki poborowi korzeniowemu poświęcony będzie jeden z podrozdziałów niniejszej pracy (III.3.4).

III.1.4. Stosunki izotopowe Pu badane za pomocą spektrometrii masowej

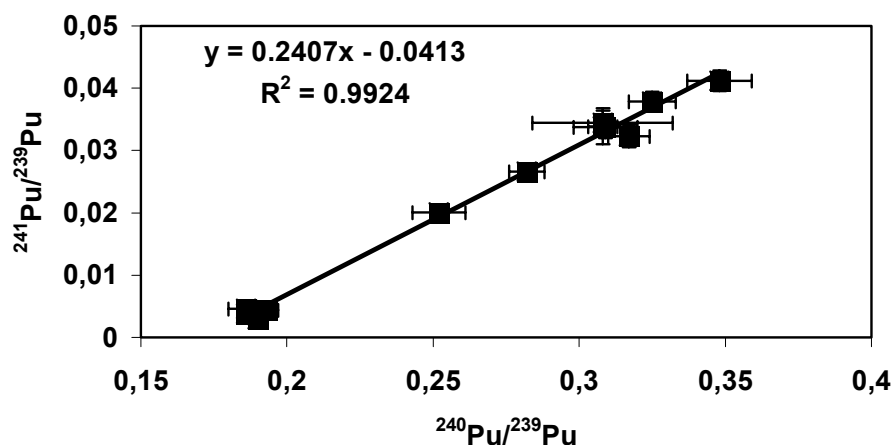
W roku 2001 uzyskano możliwość przeprowadzenia analizy stosunków izotopowych dla plutonu w wybranych z omawianych powyżej próbek ściółek leśnych z 1991 roku. Badanie przeprowadzono na Uniwersytecie Północnej Arizony w Flagstaff metodą spektrometrii masowej. Z terenów Polski północno-wschodniej pochodziło 9 zbadanych próbek a dalsze 3 z południa kraju. Próbki przekazano do amerykańskiego laboratorium w formie źródeł NdF_3 . Po ponownym rozpuszczeniu i oczyszczeniu od ewentualnych domieszek (produktów rozpadu izotopów Pu oraz śladów ^{238}U), próbki wprowadzano do spektrometru masowego wykorzystując ultradźwiękowy nebulizator, w tempie 1.0 mL/min. Pomiary wykonano w trybie tzw. niskiej rozdzielczości ($m/\Delta m = 410$). Korekta na obecność jonów $^{238}\text{U}^1\text{H}^+$ imitujących jony $^{239}\text{Pu}^+$ wynosiła ok. 1%, została wyznaczona na podstawie badania stosunku $^{238}\text{U}^1\text{H}^+/^{238}\text{U}^+$ równego $\cong 3 \times 10^{-5}$. Przykładowe widma przedstawiono w części pierwszej pracy (rys. 20). W tabeli 18 zestawiono wyniki uzyskane dla stosunków mas ^{240}Pu do ^{239}Pu , ^{241}Pu do ^{239}Pu i ^{242}Pu do ^{239}Pu (Ketterer, Hafer, Mietelski, 2002).

Na rysunku 36 przedstawiono zależność zmian stosunku liczby atomów $^{241}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ względem analogicznego stosunku $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$. Uzyskano wysoką i istotną korelację charakteryzującą się kwadratem współczynnika korelacji Pearsona $R^2=0.9924$. Oznacza to, że choć próbki charakteryzują się różnymi proporcjami ^{240}Pu lub ^{241}Pu względem ^{239}Pu , jednak zmienność ta jest ze sobą ściśle

skorelowana. Różnice w stosunkach są wynikiem mieszanego pochodzenia Pu w próbkach przy ściśle określonych, znacznie różnych, wartościach stosunków liczb atomów ^{240}Pu względem ^{239}Pu i ^{241}Pu względem ^{239}Pu w opadach czarnobylskim oraz globalnym. Przykładowo, w badaniach prowadzonych w odległości kilkunastu km od reaktora czarnobylskiego stosunek masowy ^{240}Pu do ^{239}Pu określono jako równy 0.403 ± 0.009 [Muramatsu i inni, 2000], natomiast w próbkach zawierających Pu z opadu globalnego wartość tego stosunku określono [Kelley i inni, 1999] jako równy 0.180 ± 0.014 . Zakres zmienności tego stosunku w próbkach z Polski mieścił się w granicach od 0.186 ± 0.001 (pr. A₁-204) do 0.348 ± 0.011 (pr. A₀-120).

Tabela. 18 Wyniki stosunków izotopowych (masowych) dla plutonu w ściółkach leśnych, uzyskane metodą ICP MS [Ketterer, Hafer, Mietelski, 2002].

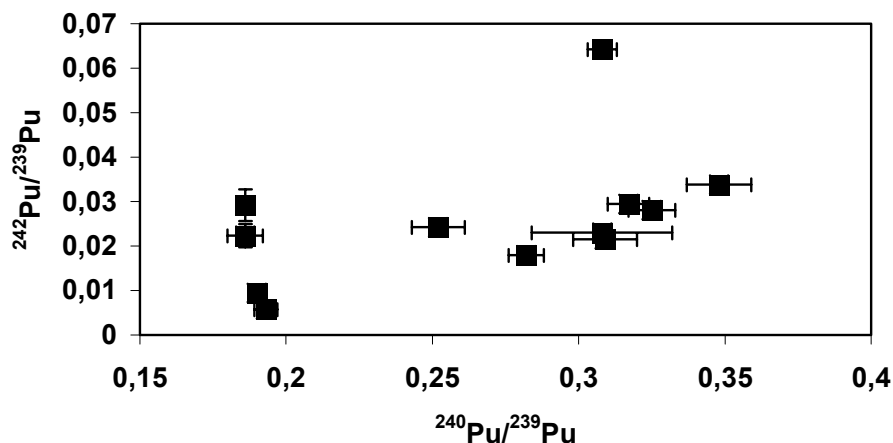
kod próbki	$^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$	$^{241}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$	$^{242}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$
A0-23	0.309 ± 0.011	0.0338 ± 0.0018	0.0215 ± 0.001
A1-23	0.308 ± 0.005	0.0339 ± 0.0029	0.0643 ± 0.0009
A0-120	0.348 ± 0.011	0.0412 ± 0.0017	0.0338 ± 0.0013
A1-120	0.282 ± 0.006	0.0266 ± 0.0008	0.018 ± 0.0004
A0-131	0.325 ± 0.008	0.0379 ± 0.0015	0.0281 ± 0.0013
A1-131	0.317 ± 0.007	0.0323 ± 0.0018	0.0294 ± 0.0015
A1-142	0.252 ± 0.009	0.0201 ± 0.0006	0.0242 ± 0.0011
A1-189	0.19 ± 0.003	0.0029 ± 0.0002	0.0095 ± 0.0001
A0-204	0.186 ± 0.006	0.0046 ± 0.0004	0.0223 ± 0.0026
A1-204	0.186 ± 0.001	0.0038 ± 0.0004	0.0292 ± 0.0036
A0-224	0.308 ± 0.024	0.0344 ± 0.002	0.023 ± 0.0011
A1-224	0.193 ± 0.004	0.0044 ± 0.0004	0.0058 ± 0.0004



Rys. 36. Wykres zależności pomiędzy stosunkiem liczby atomów ^{241}Pu do ^{239}Pu oraz ^{240}Pu do ^{239}Pu w próbkach ściółek leśnych [Ketterer, Hafer, Mietelski, 2002].

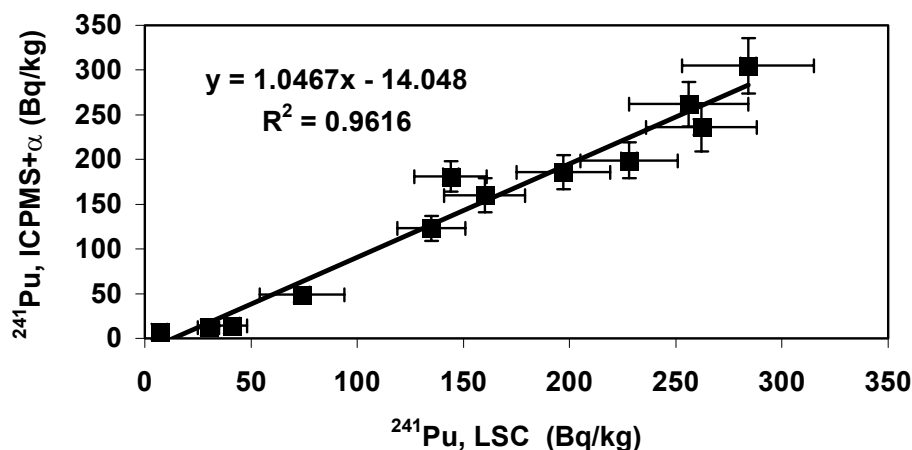
Na rysunku 37 przedstawiono wykres zależności stosunków liczby atomów ^{242}Pu względem ^{239}Pu i ponownie ^{240}Pu względem ^{239}Pu . Nie widać tu tak wyraźnej korelacji, co mogłoby potwierdzać nieliczne dane literaturowe [Kudryashov, Mironov, Konoplya, 2001] mówiące o tym, że stosunki ^{242}Pu do ^{239}Pu w opadzie czarnobylskim i globalnym nie różniły się od siebie znacząco, przyjmując wartości odpowiednio 0.033 oraz 0.037.

Jednak obserwowany w próbkach masowy stosunek izotopowy $^{242}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ zawarty jest w szerszym zakresie: od 0.0058 ± 0.0004 do 0.0643 ± 0.0009 , ze średnią arytmetyczną równą 0.0258 i odchyleniem standardowym wynoszącym 0.0147 . Rozbieżność ta nie znajduje na obecnym etapie badań satysfakcjonującego wyjaśnienia.



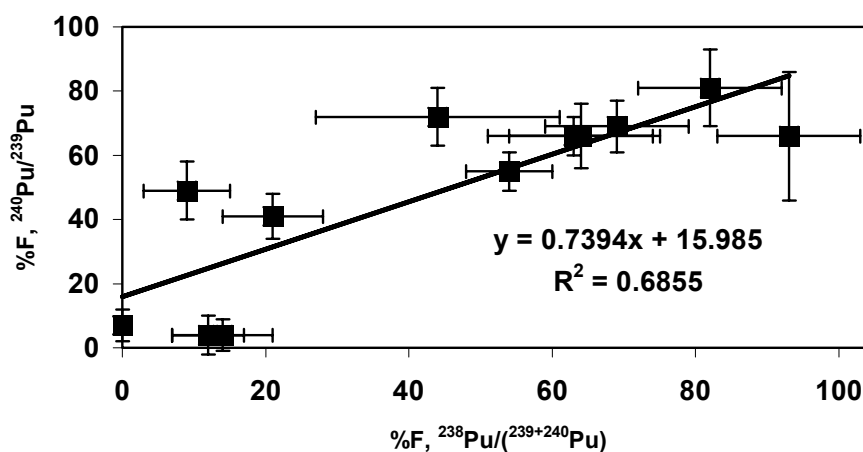
Rys. 37. Wykres zależności pomiędzy stosunkiem liczby atomów $^{242}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ oraz $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ w próbkach ściółek leśnych [Ketterer, Hafer, Mietelski, 2002].

Spójność wyników uzyskanych różnymi metodami ilustruje rysunek 38. Przedstawia on wykres zależności aktywności ^{241}Pu wyznaczonej dwoma metodami: metodą pomiaru ciekłoscyntylacyjnego oraz uzyskaną na podstawie stosunku izotopowego $^{241}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ oraz $^{241}\text{Pu}/^{240}\text{Pu}$ (wyznaczonych metodą spektrometrii masowej) przy uwzględnieniu sumarycznej aktywności $^{239+240}\text{Pu}$ wyznaczonej metodą spektrometrii alfa. Kwadrat współczynnika korelacji Pearsona wynosi 0.9616 , a współczynniki kierunkowy prostej korelacyjnej różny jest od jedności o mniej niż 5%.



Rys. 38 . Wykres zależności aktywności ^{241}Pu wyznaczonej metodą pomiaru ciekłoscyntylacyjnego oraz ICP MS z normalizacją za pomocą wyników pomiarów uzyskanych metodą spektrometrii alfa.

Na rysunku 39 przedstawiono wykres zależności procentowego udziału frakcji Pu pochodzenia czarnobylskiego w próbkach ściółki leśnej F (wórnica) uzyskanej na podstawie stosunku masowego $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ oraz na podstawie stosunku aktywności $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$. Kwadrat współczynnika korelacji Pearsona wynosi tu 0.6855. Współczynnik kierunkowy prostej korelacyjnej jest jednak istotnie mniejszy od 1, co sugeruje pewien błąd systematyczny między obiema metodami oceny udziału frakcji czarnobylskiej. Z przebiegu dopasowanej prostej na rysunku 35 wynika, że problem dotyczy raczej niedoszacowania udziału czarnobylskiego w pomiarach alfa-spektrometrycznych dla próbek z Polski południowej (niskie wartości F), niż przeszacowania dla próbek z Polski północno-wschodniej (duże F). Znaczny udział Pu pochodzenia czarnobylskiego w badanych próbkach z północno-wschodniej Polski jest jednak bezsporny.

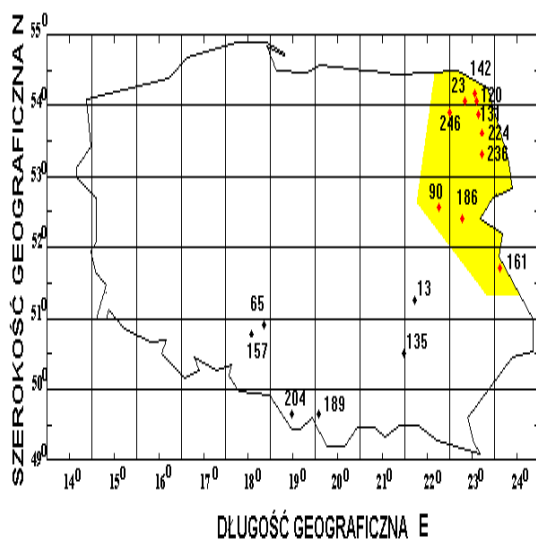


Rys. 39. Wykres zależności procentowego udziału Pu pochodzenia czarnobylskiego (F) ocenionego metodą spektrometrii masowej na podstawie stosunku liczby atomów ^{240}Pu do ^{239}Pu (oś rzędnych) względem tej samej wielkości ocenianej za pomocą spektrometrii promieniowania alfa (oś odciętych).

III.1.5. Próba rekonstrukcji czarnobylskiego opadu ^{90}Sr .

W przypadku badań ^{90}Sr zagadnienia biodostępności i rekonstrukcji opadu spletają się ze sobą. Rekonstrukcja opadu ^{90}Sr poprzez badanie aktywności ściółki może prowadzić do zaniżenia wartości opadu z racji ruchliwości Sr w środowisku [Alexakhin i inni, 1994] i wynikającego stąd jego wbudowywaniu się w rośliny. Dlatego lepsze oszacowanie może otrzymać korzystając ze znanych literaturowych wartości współczynników koncentracji (AC) i aktywności ^{90}Sr stwierdzonej w roślinach.

Szesnaście próbek liści borówki-czarnej jagody (*Vaccinium myrtillus*) zebranych w 1991 r na terenie Polski wybrano w 1996 do pomiarów aktywności ^{90}Sr . Wcześniej (1992-93) w próbkach tych i w 102 innych, podobnych, wyznaczono aktywności ^{137}Cs , ^{134}Cs i ^{40}K [Mietelski, 1994], co m.in. pozwoliło przedstawić orientacyjną mapę skażeń izotopami cezu terenu Polski. Dla każdego z tych 16 punktów dostępny był komplet informacji na temat obserwowanych w dwóch warstwach ściółki leśnej (A_0 i A_1) poziomów skażeń gamma promieniotwórczych izotopami takimi jak: ^{137}Cs , ^{134}Cs , ^{125}Sb , ^{106}Ru , ^{144}Ce , ^{154}Eu , ^{155}Eu i ^{60}Co [Mietelski, 1994, Mietelski i inni, 1994 b] oraz prawie wszędzie na temat skażeń Pu, Am i Cm (przytoczone powyżej za [Mietelski i Wąs, 1995; Mietelski i Wąs, 1997]). Próbki można podzielić na pochodzące z dwóch obszarów na terenie Polski (rys. 40). Dziesięć pochodziło z Polski północno-wschodniej (kody powierzchni: 23, 90, 120, 131, 142, 161, 186, 224, 236, 248). Pozostałe sześć pochodziło z reszty kraju, (kody powierzchni: 13, 65, 135, 157, 189, 204) w tym również (próbki 65 i 157) z najsilniej skażonych radiocezem (^{137}Cs i ^{134}Cs) terenów Opolszczyzny.



Rys. 40. Podział terytorium Polski w badaniach skażeń ^{90}Sr w liściach czarnej jagody [Mietelski i Vajda, 1997] na obszar kontrolny – Polskę południowo-centralną i wyróżniony kolorem – Polskę północno-wschodnią wraz z kodami miejsc poboru próbek .

Wstępną mieneralizację próbek przeprowadzono w IFJ natomiast analizy radiochemiczne i pomiar przeprowadzono w Instytucie Techniki Jądrowej Politechniki Budapeszteńskiej. Zastosowano opracowaną tam metodę oznaczeń ^{90}Sr [Vajda i inni, 1992]. Po 1999, metodę tą, z modyfikacjami (patrz Aneks 2), wdrożono w Laboratorium Badań Skażeń Radioaktywnych Środowiska NZ IX IFJ [Mietelski i Gaca, 2002]. W wersji zastosowanej w tych pomiarach składała się ona z kilku podstawowych kroków: współstrącenia ^{90}Sr wraz z dodanym nośnikiem strontu w formie szczawianu, chromatograficznej separacji z wykorzystaniem eteru koronowego (nazwa handlowa jonitu Sr-Spec lub później Sr-Resin, prod. EI Chrom Ind., Ill. USA) i ponownym strąceniu szczawianu strontu dla grawimetrycznego wyznaczenia odzysku. Pomiar aktywności wydzielonego ^{90}Sr prowadzono z wykorzystaniem spektrometru ciekłoscyntylacyjnego Packard-Canberra 2050 w Budapeszcie.

Aktywność ^{90}Sr była powyżej granicy oznaczalności we wszystkich zbadanych tu próbkach. Uzyskane wyniki, obliczona na dzień 1 września 1991 (umowną datę poboru próbek) zestawiono w tabeli 19 wraz z uzyskanymi uprzednio dla tych samych próbek [Mietelski, 1994] wynikami dla stężeń

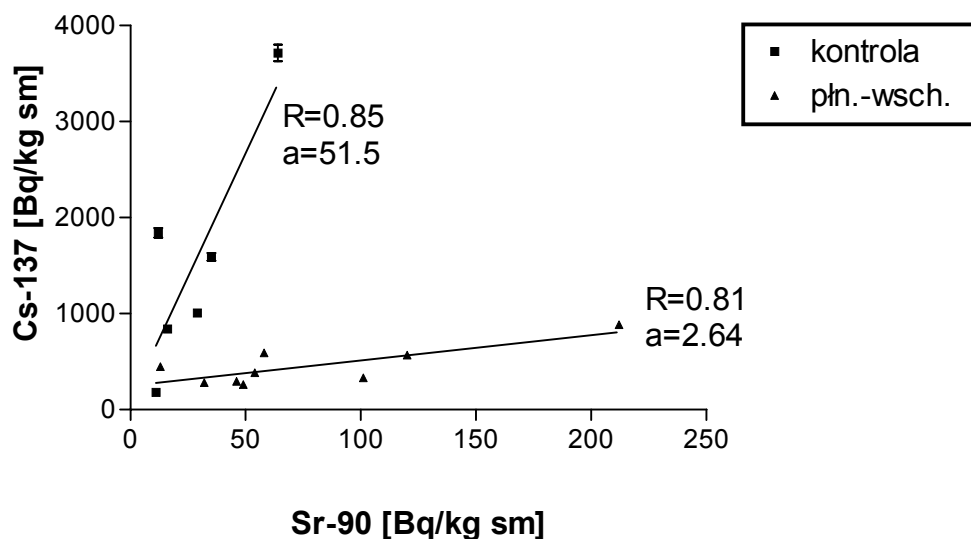
izotopów cezu. Największą aktywność ^{90}Sr , wynoszącą 208 ± 1.6 Bq/kg s.m. stwierdzono w próbce nr 90 (okolice Sokołowa Podlaskiego). Inne względnie wysokie aktywności to 99 ± 1.9 Bq/kg s.m. (próbka 246) i 118 ± 1.9 Bq/kg s.m. (próbka 131). Obie te próbki pochodziły z obszaru Puszczy Augustowskiej. Najmniejsze aktywności ^{90}Sr , rzędu 10 Bq/kg s.m. stwierdzono w próbkach 13 i 157 z grupy z obszaru kontrolnego i 161 oraz 236 z Polski wschodniej. Średnia arytmetyczna dla próbek z terenów wschodnich wynosiła 68.5 Bq/kg s.m. z odchyleniem standardowym (σ) wynoszącym 59.4 Bq/kg s.m., podczas gdy dla grupy kontrolnej było to 27.2 Bq/kg s.m. ($\sigma=19.8$ Bq/kg s.m.). Otrzymane wyniki można porównać z danymi dla Szwecji [Melin i inni, 1994], uzyskanymi bezpośrednio przed katastrofą czarnobylską dla liści borówki-czarnej jagody (*Vaccinium myrtillus*). Obserwowane tam aktywności ^{90}Sr były rzędu 15 Bq/kg, a więc nieznacznie przekraczały najniższe obserwowane tu stężenia ^{90}Sr . Niższe aktywności stwierdzano w 1985 r. (od 0.9 Bq/kg s.m. do 7 Bq/kg s.m.) w Niemczech [Wilken i Diehl, 1987].

Tabl. 19. Wyniki pomiarów ^{90}Sr w liściach borówki-czarnej jagody (*Vaccinium myrtillus*), zbieranych w 1991 na terenie Polski. Dla porównania dane dla skażeń ^{137}Cs i ^{134}Cs w tych samych próbkach wzięte z pracy [Mietelski, 1994]. Wszystkie aktywności na dzień 1 września 1991, umowny dzień poboru próbek [Mietelski i Vajda, 1997].

Obszar	Kod próbki	^{90}Sr	^{137}Cs	^{134}Cs
		(Bq/kg s.m.)	(Bq/kg s.m.)	(Bq/kg s.m.)
Wyróżniony	23	45 ± 1.6	295 ± 10	19 ± 6
	90	208 ± 1.6	885 ± 25	91 ± 24
	120	31 ± 1.1	283 ± 10	36 ± 9
	131	118 ± 1.9	568 ± 15	45 ± 12
	142	48 ± 1.9	261 ± 9	22 ± 7
	161	12 ± 1.3	447 ± 17	30 ± 8
	186	57 ± 2.4	590 ± 16	61 ± 13
	224	53 ± 2.3	384 ± 13	16 ± 6
	236	13 ± 1.7	155 ± 6	7 ± 3
	246	99 ± 1.9	330 ± 11	29 ± 7
	Kontrolny	13	10 ± 1.3	183 ± 8
65		63 ± 1.8	3715 ± 88	369 ± 25
135		28 ± 2.8	1010 ± 31	93 ± 23
157		12 ± 2.1	1840 ± 49	184 ± 5
189		16 ± 1.2	843 ± 17	79 ± 14
204		34 ± 2.3	1590 ± 40	134 ± 10

Średnie stosunki aktywności $^{137}\text{Cs}/^{90}\text{Sr}$ był istotnie różne dla obu wydzielonych grup. Dla próbek z obszaru wyróżnionego wynosił 9.6 ($\sigma=9.1$), a dla próbek z obszaru kontrolnego 60 ($\sigma=48$). Różnica między dwiema terytorialnymi grupami pogłębia się, gdy dla scharakteryzowania jej posłużymy się nie średnimi obliczonymi dla danych populacji lecz współczynnikami nachylenia prostych korelacyjnych otrzymanych dopasowaniem metodą najmniejszych kwadratów, na płaszczyźnie aktywności ^{137}Cs i ^{90}Sr . Dla wszystkich próbek nie istnieje związek pomiędzy ^{90}Sr a ^{137}Cs (współczynnik korelacji Pearsona $R^2=0.00006$). Obraz zmienia się całkowicie, gdy potraktować grupy terytorialne oddzielnie (rys. 41). Uzyskane współczynniki kierunkowe prostych korelacyjnych (współczynniki nachylenia) wynoszą: 51.5 dla grupy kontrolnej i 2.64 dla próbek z Polski północno-wschodniej przy istotnych, wysokich współczynnikach korelacji Pearsona pomiędzy obserwowanymi aktywnościami ($R^2=0.656$ i $R^2=0.740$). Dopasowane współczynniki nachylenia można uważać za stosunek aktywności biodostępnych form ^{137}Cs i ^{90}Sr w warstwie korzeniowej ściółki leśnej mnożonych przez stosunek odpowiednich współczynników transferu radionuklidów. Dla obu grup uzyskano niezerowe wartości rzędnej (aktywności ^{137}Cs) dla zerowej aktywności ^{90}Sr wynoszące 99 Bq/kg s.m. i 200 Bq/kg s.m.. Wcześniej, dla 118 próbek liści borówki-czarnej jagody z terenu całej Polski obliczono [Mietelski, 1994] stężenia ^{137}Cs pochodzącego z testów z bronią jądrową. Średnio wynosiło ono 50 Bq/kg s.m., a więc nie odbiegało znacząco od przytoczonych powyżej wartości

rzędnych. Rodzi to pokusę interpretacji otrzymanych tu niezerowych rzędnych dla zerowych odciętych jako wartości stężeń ^{137}Cs przedczarnobylskich. W konsekwencji, można założyć, że ^{90}Sr z testów z bronią jądrową nie odgrywa tu znaczącej roli i że znakomita większość ^{90}Sr , tak jak i ^{137}Cs pochodzi z katastrofy czarnobylskiej. Jednakże, trzeba do tego stwierdzenia podchodzić jak do hipotezy roboczej. Potwierdzają ją jednak częściowo otrzymane wartości stosunków ^{137}Cs do ^{90}Sr . Przykładowo, w Moguncji [Denschlag i inni, 1987], w filtrach powietrza zbieranych w okresie przechodzenia czarnobylskiej chmury wynosił on 77, a dla trawy z południowej Bawarii równał się wówczas 90 [Bunzl i Kracke, 1990]. Wcześniejsze raporty krakowskie [Broda i inni, 1986; Florkowski i inni, 1987] podawały oszacowania wartości tego stosunku w granicach od 50 do 250. Z drugiej strony, wartość tego stosunku dla miejsc położonych w pobliżu Czarnobyla silnie zmienia się od miejsca do miejsca i waha się w zakresie od 2.1 do 55 [IAEA, 1991]. Niższa z tych wartości jest zbliżona do uzyskanego nachylenia opisywanej tu prostej korelacyjnej dla próbek z Polski północno-wschodniej, a wyższa dla analogicznej wielkości dla próbek z grupy kontrolnej. Podobieństwa w stosunkach aktywności ^{90}Sr i ^{137}Cs w roślinach do tych obserwowanych w opadzie sugerują podobne wartości współczynnika przenikania TF lub koncentracji AC obu nuklidów ze ściółki leśnej do liści borówki-czarnej jagody. Dla ^{137}Cs otrzymano [Mietelski, 1994] średnio (mediana rozkładu) współczynnik koncentracji AC równy $0.11 \text{ (m}^2/\text{kg)}$. Po testach z bronią jądrową obserwowano, że stosunek współczynnika przenikania ^{90}Sr względem ^{137}Cs dla różnych roślin wynosił średnio 1.87 ± 0.47 [Bertoli i inni, 1968]. Zaobserwowana tu najwyższa aktywność ^{90}Sr odpowiada depozycji ^{90}Sr z Czarnobyla mieszczącej się w zakresie od 1 kBq/m^2 do 2 kBq/m^2 . To oszacowanie odpowiada ocenie depozycji ^{90}Sr opartej na proporcjonalności aktywności ^{90}Sr do aktywności izotopów Pu w opadzie czarnobylskim i przewyższa dotychczas przyjmowane oceny [Żarnowiecki, 1988; PAA, 1991].



Rys. 41. Wykres zależności aktywności ^{90}Sr i ^{137}Cs w liściach borówki-czarnej jagody dla próbek z północno-wschodniej Polski i reszty kraju („kontrola”) [Mietelski i Vajda, 1977]. Oznaczenia: sm – sucha masa, R – współczynnik korelacji Pearsona, a – współczynniki kierunkowe dopasowanych prostych).

III. 2. Badania prowadzone dla próbek porostów lub ściółek pobranych w latach 1996-2002 na terenie Puszczy Augustowskiej

Przedstawione dotychczas wyniki pochodziły z analiz próbek pobieranych w roku 1991. Wskazały one na największe nasilenie opadu plutonu pochodzenia czarnobylskiego w rejonie Puszczy Augustowskiej. Nurtującym autora pytaniem, pozostającym otwartym przez pewien czas, była kwestia ich reprezentatywności.

Podjęto kilka prób sprawdzenia ich reprezentatywności poprzez badania prowadzone na niezależnie pobranym materiale.

III.2.1. Pomiary próbek porostów

W celu weryfikacji hipotezy o powszechności depozycji plutonu pochodzenia czarnobylskiego na terenie Puszczy Augustowskiej wykonano analizy stężeń plutonu w trzech losowo pobranych w lecie 1995 roku dużych (rzędu 100 g s.m.) próbkach porostu nadrzewnego z gatunku mąklik otrąbiasty (*Pseudevernia furfuracea*). Wykonano również analizę kontrolnej analogicznej próbki z terenu Gorców.

Porosty gromadzą substancje skażające środowisko przyrodnicze jedynie poprzez ich depozycję na powierzchni plechy wraz z suchym lub mokrym opadem atmosferycznym, dlatego często wykorzystywane są w badaniach retrospektywnych nad skażeniami docierającymi drogą atmosferyczną [Bizarov, 1993; Jacquilot i Daillant, 1997]. Zdaniem wielu badaczy porosty są nawet lepszym materiałem badawczym dla tego celu niż ściółki leśne. Te ostatnie zawierają również radionuklidy, które wcześniej dostały się wraz z poborem korzeniowym do dziś martwych już części roślin stanowiących obecnie ściółkę.

Porosty dostarczono z Instytutu Botaniki Wyższej Szkoły Pedagogicznej w Krakowie (Dr R. Kozik), a wyniki opublikowano w 1996 roku [Mietelski i Kozik, 1996] wraz z wynikami uzupełniających, tylko gamma spektrometrycznych, analiz próbek porostów kilku gatunków pobieranych w różnych miejscach na terenie Polski. Szczegóły opisu próbek porostów zestawiono w tabeli 20.

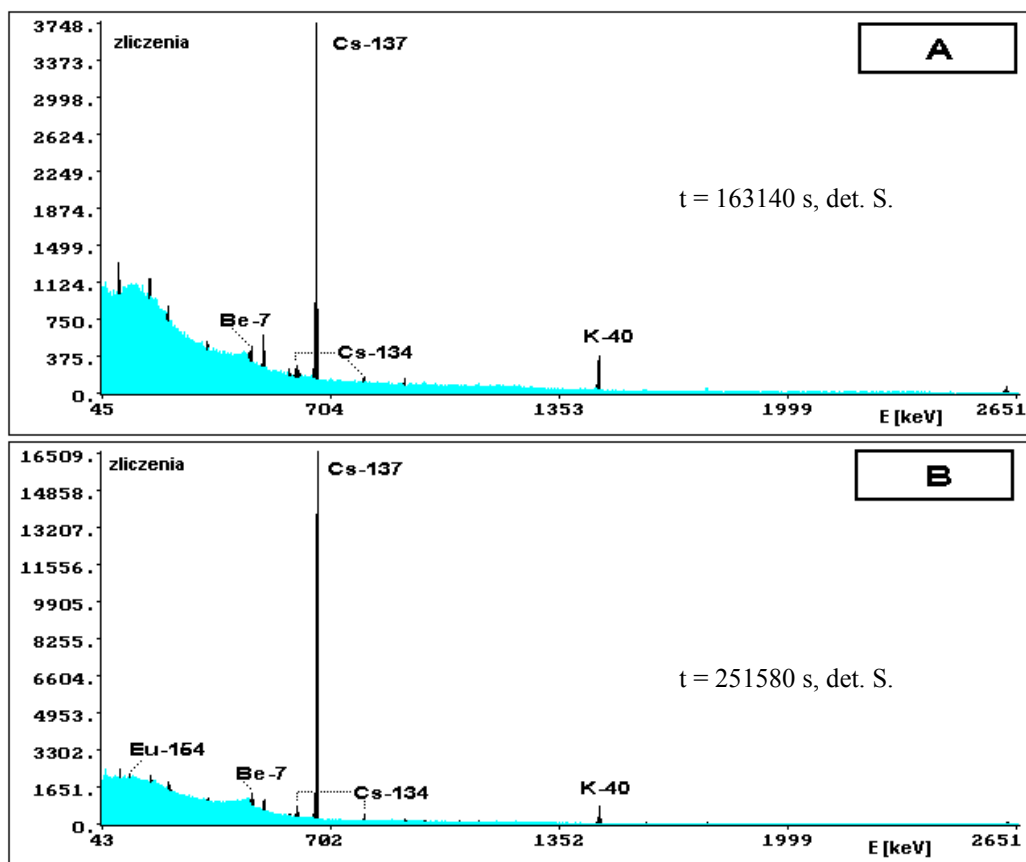
Tabela 20. Dane o próbkach porostów nadrzewnych z gatunku Mąklik otrąbiasty (*Pseudevernia furfuracea*) pobranych w 1995 w Puszczy Augustowskiej (K1-K3) i w Gorcach (K4) [Mietelski i Kozik, 1996]. Depozycja ^{137}Cs wg mapy z pracy [Strzelecki i inni, 1993].

kod próbki	masa (g)	Najbliższa osada	Dłg. geogr. E	Szer. geogr. N	Data poboru	^{137}Cs depozycja (kBq/m ²)
K1	128.5	Sernetki	22° 59'	54° 10'	12.08.1995	3÷8
K2	67.4	Przewież	22° 57'	54° 06'	14.08.1995	3÷8
K3	80.2	Gruszki	23° 01'	54° 06'	14.08.1995	3÷8
K4	179.0	Czoło	20° 07'	49° 34'	10.10.1995	< 3

Przysiółek Przewież znajduje się nad Kanalem Augustowskim w odległości 9 km od Augustowa, Gruszki znajdują się na wschodzie Puszczy, w pobliżu przecięcia przez Czarną Hańczę granicy polsko-białoruskiej, a Sernetki znajdują się w północnej części Puszczy, nad Czarną Hańczą, ale na skraju Wigierskiego Parku Narodowego.

W wysuszonych próbkach oznaczono stężenia pierwiastków gamma promieniotwórczych (rys. 42 A) - antropogenicznych: ^{137}Cs i ^{134}Cs oraz naturalnych: ^7Be i ^{40}K . Wyniki aktywności otrzymane dla suszu mąklika otrąbiastego zestawiono w Tabeli 21. Wszystkie trzy próbki z Puszczy Augustowskiej (oznaczone K1, K2, K3) wykazują podobny poziom skażeń izotopami cezu. Dla ^{137}Cs są to aktywności od 300 do 375 Bq/kg s.m. Próbka K4 z Gorców zawiera około dwukrotnie mniej ^{137}Cs : 144 ± 14 Bq/kg s.m. Analiza stosunku izotopowego $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ wskazywała na opad czarnobylski jako na główne źródło cezu w próbkach [Mietelski i Kozik, 1996]. Obserwowane tu aktywności izotopów cezu nie były wysokie, jak na próbki porostów z Polski. Dla porównania w pracy [Kapała i inni, 1996] średnia aktywność ^{137}Cs w poroście islandzkim (*Lichen islandicus*) z Polski północno-

wschodniej była wyższa i wynosiła 1510 Bq/kg s.m. Różnica może wynikać ze specyfiki gatunkowej – porosty należały do innych gatunków.



Rys. 42 Przykład widma promieniowania gamma próbki (K1) porostu gatunku mąklik otrąbiasty (*Pseudevernia furfuracea*) z Puszczy Augustowskiej. A – po wysuszeniu, B – po spoieleniu w 400°C [Mietelski i Kozik, 1996].

Tabela 21. Wyniki pomiarów gamma spektrometrycznych wysuszonych i zmielonych próbek porostów gatunku mąklik otrąbiasty, aktywności obliczono na dzień poboru próbek [Mietelski i Kozik, 1996].

Kod próbki	¹³⁷ Cs	¹³⁴ Cs	⁷ Be	⁴⁰ K
	(Bq/kg s.m. ± 1σ)			
K1	370±36	9.6±5.0	285±40	335±75
K2	300±12	8.2±2.5	155±35	245±35
K3	375±17	9.8±4.0	115±29	280±37
K4	144±14	4.0±2.5	250±13	260±60

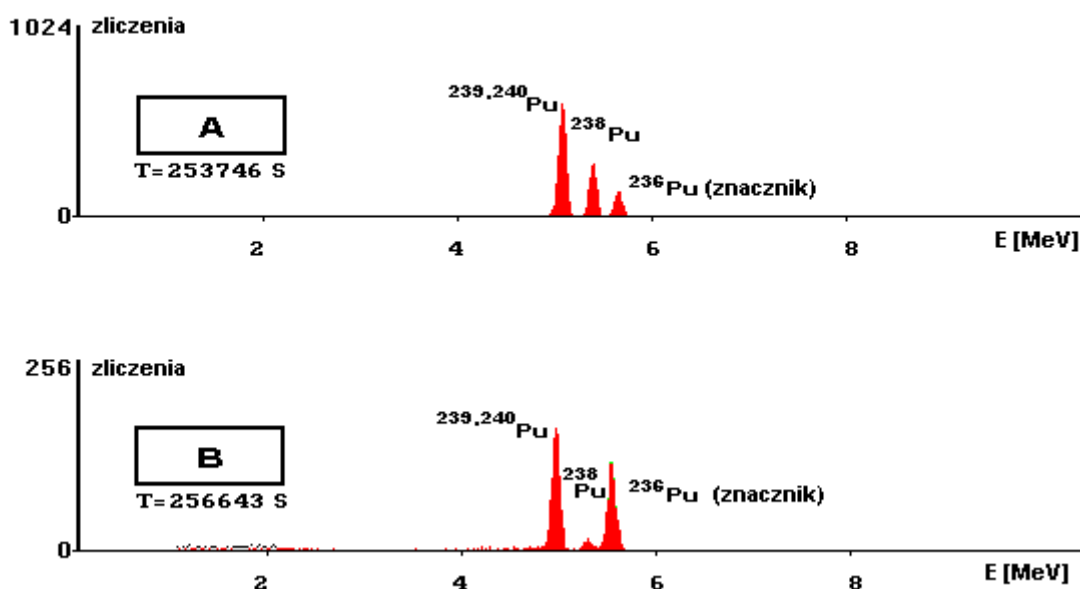
Po pomiarze gamma spektrometrycznym suchych próbek były one spoielane w 400 °C a popioły ponownie poddano analizie gamma spektrometrycznej. Dzięki poprawie geometrii pomiaru (zmniejszenie objętości) w próbkach K1, K2, K3 ujawniła się wówczas obecność śladów ¹⁵⁴Eu (rys. 42 B), jednak ich analiza ilościowa ciągle prowadziła do wyników obarczonych dużą niepewnością pomiarową.

Przeprowadzono analizę zawartości Pu w porostach stosując typową metodę radiochemiczną opisaną w Aneksie 2. Wyniki zestawiono w tabeli 22. Próbki K1, K2 i K3 z Puszczy Augustowskiej miały wyższe aktywności Pu od próbki K4 z Górców. Najwyższą aktywności zarówno ²³⁹⁺²⁴⁰Pu jak i ²³⁸Pu miała próbka K3, odpowiednio wynosiły one 1.55±0.09 Bq/kg i 0.68±0.04 Bq/kg. Próbki K1, K2 i K3 wykazywały około siedemdziesięcioprocentowy udział ²³⁹⁺²⁴⁰Pu z Czarnobyla. Pozostałe

około trzydzieści procent aktywności $^{239+240}\text{Pu}$ pochodzące z globalnego opadu. Ocenione aktywności z opadu globalnego były porównywalne, z aktywnością zaobserwowaną dla próbki K4 z Gorców, gdzie udział czarnobylskiego Pu nie przewyższał 10%. Wyrazistą różnicę proporcji izotopów Pu ilustrują zebrane widma cząstek alfa wydzielonego Pu (rys. 43).

Tabela 22. Wyniki pomiarów stężeń izotopów plutonu w porostach z 1995 r., Y – odzysk, F – udział frakcji czarnobylskiej, podane niepewności pomiarów uwzględniają tylko statystykę zliczeń [Mietelski i Kozik, 1996].

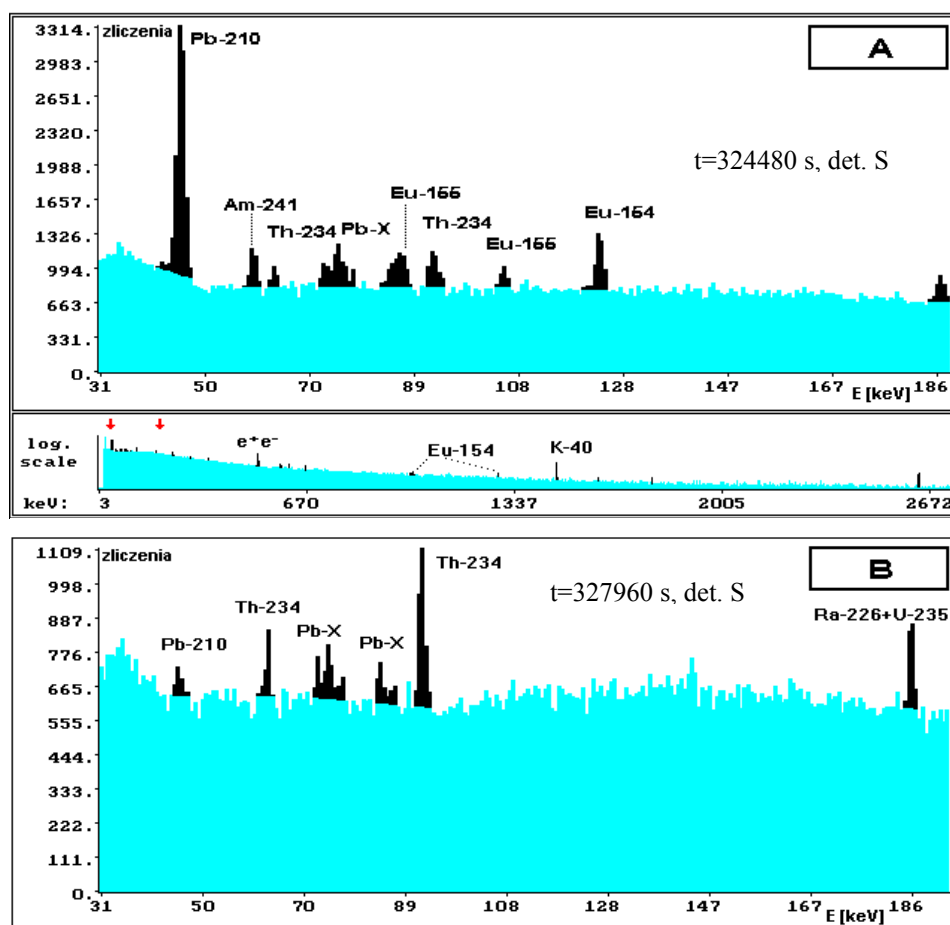
kod próbki	Stosunek: masa spoielona do suchej (%)	Odzysk Y (%)	^{238}Pu (Bq/kg s.m. $\pm 1\sigma$)	$^{239+240}\text{Pu}$ (Bq/kg s.m. $\pm 1\sigma$)	F (%)
K1	2.9	79 \pm 5	0.37 \pm 0.03	1.02 \pm 0.07	64 \pm 6
K2	2.2	89 \pm 6	0.56 \pm 0.04	1.35 \pm 0.09	73 \pm 7
K3	2.9	99 \pm 6	0.68 \pm 0.04	1.55 \pm 0.09	78 \pm 7
K4	3.6	86 \pm 5	0.02 \pm 0.01	0.23 \pm 0.02	9 \pm 5



Rys. 43. Porównanie widm promieniowania alfa Pu wydzielonego z porostów (*Pseudevernia furfuracea*): A - próbka K3 z Puszczy Augustowskiej, B - próbka K4 z Gorców [Mietelski i Kozik, 1996].

Po wydzieleniu Pu zastosowano uproszczoną metodę radiochemiczną (opisaną w Aneksie 2) służącą do wydzielenia łącznej frakcji zawierającej m.in. pierwiastki ziem rzadkich, ameryk i przynajmniej częściowo ^{210}Pb . Uzyskano źródła o masie rzędu kilkudziesięciu miligramów i wykonano pomiary gamma spektrometryczne w oparciu o kalibrację powierzchniowym źródłem ^{241}Am , ^{155}Eu , ^{154}Eu [Mietelski i Kozik, 1996]. Nie stosowano wewnętrznego wzorca (znacznika) ^{243}Am (z powodu wyczerpania się posiadanego) a więc uzyskane wyniki, przedstawione w tabeli 23, są raczej zaniżonym oszacowaniem aktywności obecnych w próbkach. W większości próbek znaleziono wyraźne linie widmowe od ^{241}Am , ^{155}Eu , ^{154}Eu i ^{210}Pb (rys. 44). Izotopy europu stwierdzono zasadniczo wyłącznie w próbkach z Puszczy Augustowskiej (choć nie był całkowicie wykluczony ślad ^{154}Eu w próbce z Gorców). Stężenia ^{241}Am były wyższe dla próbek K1-K3 niż dla próbki K4, co sugeruje obecność ^{241}Am z opadu czarnobylskiego w tych próbkach. Dla ^{210}Pb znacznie

wyższą aktywność stwierdzono dla próbki z Gorców, co prawdopodobnie wynika z większej depozycji tego naturalnego radionuklidu na terenach górskich z bardziej obfitymi deszczami.



Rys. 44. Widmo promieniowania gamma frakcji ziem rzadkich i ameryku wydzielonych z próbki K1. W górnej części rysunku A przedstawiono w powiększeniu niskoenergetyczną część widma (zaznaczoną strzałkami w dolnej części rysunku, gdzie widać całe widmo w skali logarytmicznej). Na całym widmie zaznaczono widoczne również linie 996, 1004 i 1275 keV ^{154}Eu . Na rysunku B przedstawiono dla porównania tło spektrometru w wybranym fragmencie [Mietelski i Kozik, 1996].

Tabela 23. Wyniki pomiarów gamma spektrometrycznych wydzielonych radiochemicznie frakcji zawierających pierwiastki ziem rzadkich i ameryk. Niepewności uwzględniają jedynie statystykę pomiarów, symbol ">" odnosi się do faktu, że nie zastosowano żadnego znacznika, a więc rzeczywiste aktywności są co najmniej takie, jak podano w tabeli [Mietelski i Kozik, 1996].

kod	^{155}Eu 105 keV	^{154}Eu 123 keV	^{241}Am 59.5 keV	^{210}Pb 46.5 keV
(Bq/kg s.m. $\pm 1\sigma$)				
K1	$\geq 0.39 \pm 0.08$	$\geq 0.66 \pm 0.05$	$\geq 0.85 \pm 0.10$	$\geq 191 \pm 5$
K2	$\geq 0.33 \pm 0.19$	$\geq 0.52 \pm 0.12$	$\geq 0.36 \pm 0.23$	$\geq 54 \pm 9$
K3	$\geq 0.58 \pm 0.17$	$\geq 0.91 \pm 0.10$	$\geq 1.21 \pm 0.22$	$\geq 89 \pm 9$
K4	<DL	$\geq 0.05 \pm 0.03$	$\geq 0.29 \pm 0.09$	$\geq 286 \pm 5$

Obliczone wartości stosunków aktywności składowej czarnobylskiej $^{239+240}\text{Pu}$ (oznaczonej A_{ch}) względem ^{137}Cs i $A_{\text{ch}}/^{154}\text{Eu}$ podane na dzień 1.05.1986 zestawiono w tabeli 24. Próbką z Polski południowej charakteryzuje się o rząd wielkości niższą od pozostałych wartością stosunku aktywności A_{ch} do ^{137}Cs . Jest to zgodne z hipotezą o opadzie drobnych gorących cząstek w Polsce północno-

wschodniej i wynikających stąd odmiennych proporcjach aktywności poszczególnych izotopów. Średnia wartość stosunku $A_{ch}/^{154}\text{Eu}$, równa jest 0.55. Jest ona zbliżona do wartości obliczonej dla rdzenia reaktora bloku IV w Czarnobylu w chwili katastrofy, równej 0.45 [Jaracz i inni, 1995]. Wynik ten sugeruje wysoki, równy 82%, średni odzysk europu w zastosowanej procedurze radiochemicznej. Podobieństwo chemiczne ameryku i europu powoduje, że sugestia o podobnie wysokim odzysku odnosi się również do ^{241}Am (lecz niekoniecznie do ^{210}Pb). Czynniki poprawki na rozpad (do 1986 r.) dla ^{154}Eu wynosił 2.11, a dla ^{155}Eu 3.94. Obliczona średnia wartość stosunku ich aktywności (wolna od błędów systematycznych wywołanych nieznanym odzyskiem) wynosi 0.87, co jest bardzo zbliżone do analogicznej wartości średniej obliczonej dla próbek ściółek leśnych [Mietelski, 1994] wynoszącej 0.81. Obliczenia dla rdzenia przewidywały 0.61 [Jaracz i inni, 1995], co wydaje się rozbieżnością niezbyt drastyczną. Mieszane pochodzenie ^{241}Am w próbce wydaje się być faktem w świetle znacznie wyższych aktywności dla próbek K1-K3 niż K4, jednak obliczone aktywności obarczone są na tyle dużymi błędami pomiarowymi, że bardziej wnikliwa analiza wydaje się być nieuzasadniona.

Tabela 24. Wartości wybranych stosunków aktywności radionuklidów z opadu czarnobylskiego zaobserwowanych w próbkach porostów, obliczone na dzień 26.04.1986, A_{ch} oznacza obliczoną czarnobylską frakcję aktywności $^{239+240}\text{Pu}$ [Mietelski i Kozik, 1996].

kod	$A_{ch}/^{137}\text{Cs}$	$A_{ch}/^{154}\text{Eu}\#$	$^{154}\text{Eu}/^{155}\text{Eu}$
K1	$(1.4\pm 0.2)\cdot 10^{-3}$	0.47 ± 0.07	0.91 ± 0.22
K2	$(2.7\pm 0.1)\cdot 10^{-3}$	0.90 ± 0.23	0.84 ± 0.52
K3	$(2.6\pm 0.3)\cdot 10^{-3}$	0.63 ± 0.10	0.84 ± 0.26
K4	$(1.2\pm 0.5)\cdot 10^{-4}$	0.20 ± 0.12	ND

- założony odzysk równy 100%.

III.2.2. Pomiary aktywności ściółek z Puszczy Augustowskiej pobranych w 1999 r.

Drugą weryfikację wyników dotyczących opadu czarnobylskich „gorących cząstek typu paliwowego” w próbkach z Puszczy Augustowskiej przeprowadzono w oparciu o pomiar aktywności próbek ściółek leśnych pobrane na przełomie lipca i sierpnia 1999 r. Próbkę pobierano w miejscach zbliżonych do lokalizacji punktów poboru próbek oznaczonych w trakcie zbierania próbek w 1991 roku kodami 120 (Płaska), 131 (Lipsk) i 142 (Głęboki Bród). Próbkę zanalizowano pod kątem zawartości substancji gamma promieniotwórczych. Dane o próbkach wraz z wynikami analiz gamma spektrometrycznych zestawiono w tabeli 25. Miejscowość Mikaszówka znajduje się ok. 11 km na wschód od Płaskiej (kod 120 w pomiarach z roku 1991), nad jeziorem Mikaszewo, w miejscu połączenia Czarnej Hańczy z Kanałem Augustowskim. Jest to więc centralno-wschodnia część Puszczy Augustowskiej. Przysiółek Jazy znajduje się około 3 km bliżej Płaskiej, wzdłuż drogi łączącej obie miejscowości. Mołowiste to miejscowość położona w odległości rzędu 1 km (przeciwległa strona jeziora) od Głębokiego Brodu (wcześniej kod 142), 5 km na północ od Płaskiej. Jest to centralna część Puszczy Augustowskiej. Próbkę pobierano też w pobliżu znajdującej się na południowo-wschodnim skraju Puszczy miejscowości Lipsk (wcześniej kod 131) oraz przy leśniczówce w przysiółku Rubcewo, który znajduje się we wschodniej części Puszczy, w przybliżeniu w połowie drogi z Lipska do Mikaszówki, około 10 km na północ od Lipska.

W widmach sześciu próbek stwierdzono bez wątpliwości (rys. 45) obecność linii 123 keV pochodzącej od ^{154}Eu , w czterech z nich również innych linii ^{154}Eu , np. 1275 keV (w jednej, Aug-20, również słabsze linie 724 keV, 996 keV i 1004 keV), w trzech próbkach stwierdzono linie 105 keV pochodzącą od ^{155}Eu . Jak już wspomniano oba izotopy europu były wcześniej znajdowane w próbkach z północno-wschodniej Polski [Jaracz i inni, 1995; Mietelski, 1994] i były traktowane jako wskaźniki obecności „gorących cząstek typu paliwowego”. W tabeli 26 zestawiono aktywności izotopów ^{154}Eu i ^{155}Eu obliczone na dzień pobrania próbek (1.08.1999). Obliczenia wykonano zgodnie z procedurą kalibracyjną opisaną w pracy doktorskiej autora [Mietelski, 1994]. Obliczone aktywności są bliskie

granicy oznaczalności, nie przekraczają 2 Bq/kg s.m.. Aktywności powierzchniowe sięgają jedynie 11 Bq/m².

Omawiane tu próbki, za wyjątkiem wytypowanych pięciu (oznaczonych „Aug” z numerami 7, 8, 18, 19 i 20), poddano standardowej analizie radiochemicznej (opisanej w Aneksie 2) w celu określenia w nich aktywności alfa promieniotwórczych izotopów Pu: ²³⁸Pu i ²³⁹⁺²⁴⁰Pu oraz ⁹⁰Sr. Uzyskane wyniki dla aktywności izotopów Pu zestawiono w tabeli 27 (zarówno stężenia aktywności jak i obliczone aktywności powierzchniowe). Wyróżnione pięć próbek posłużyły do przeprowadzenia eksperymentu nad wymywalnością Cs, Pu, Sr i Am ze ściółek, opisanego w następnym podrozdziale. Po wykonanym eksperymencie można było obliczyć wyniki całkowitych aktywności poszukiwanych izotopów. Wyniki te włączono do przedstawianych w tabeli 27. Stężenia aktywności ²³⁹⁺²⁴⁰Pu zawarte są w granicach od 0.06±0.02 Bq/kg do 3.75±0.34 Bq/kg, a ²³⁸Pu od 0.019±0.014 Bq/kg do 1.74±0.14 Bq/kg s.m.. W badanych warstwach stwierdzono na 1 m² powierzchni depozycję ²³⁹⁺²⁴⁰Pu w zakresie od 10.3±0.7 Bq do 31.1±1.4 Bq, a w przypadku ²³⁸Pu od 1.3±0.1 Bq do 8.6±0.7 Bq.

Tabela 25. Charakterystyka próbek ściółek leśnych z Puszczy Augustowskiej pobranych w 1999 roku wraz z wynikami zawartości w nich ¹³⁷Cs, ¹³⁴Cs oraz ⁴⁰K. Aktywności podano na dzień 1.08.1999.

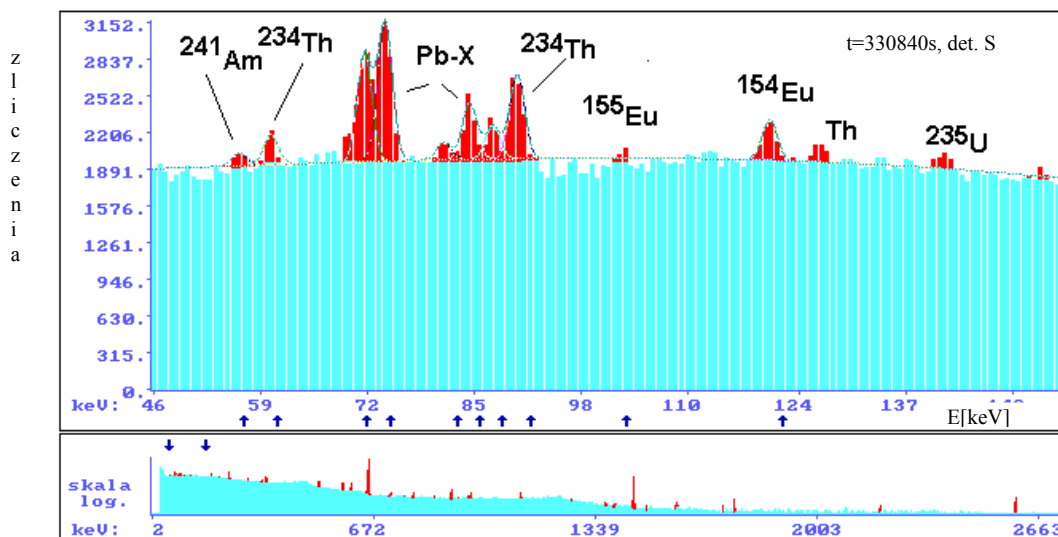
Kod próbki	opis próbki	Masa (g)	Pow. (m ²)	¹³⁷ Cs (Bq/kg s.m. ± 1σ)	¹³⁴ Cs (Bq/kg s.m. ± 1σ)	⁴⁰ K (Bq/kg s.m. ± 1σ)	¹³⁷ Cs (Bq/m ² ± 1σ)
Mikaszówka, las							
Aug-1	mech* 0-2 cm.	39.2	0.0289	115±4	1.7±0.4	188±14	155±3.1
Aug-2	2-5 cm.	365.2	0.0289	148±9	1.2±0.2	466±50	1873±6.1
Aug-3	5-9cm.	656.1	0.0289	27±1	<0.3	375±20	613±3.3
							Σ = 2640
Mikaszówka-Jazy, pole namiotowe							
Aug-4	0-2 cm	575.4	0.0289	29±1	0.2±0.2	422±20	571±3.1
Aug-5	2-5 cm	930.4	0.0289	25±1	0.2±0.1	447±21	798±3.2
Aug-6	5-10 cm	1166	0.0289	8±1	<0.2	503±25	311±5.2
							Σ = 1680
Mołowiste							
Aug-7	mech* (0-2 cm)	38.8	0.0289	172±4	0.8±0.4	395±20	231±2.3
Aug-8	ściółka (2-7 cm)	336.5	0.0289	123±6	1.0±0.2	521±38	1429±4.6
							Σ = 1660
Rubcewo							
Aug-10	ściółka 0-1 cm	27.9	0.0289	47±2	<1.9	79±18	46±5.1
Aug-11	ściółka 1-3 cm	99.8	0.0225	393±13	3.6±0.3	119±9	1744±3.4
Aug-12	ściółka 3-7 cm	394.4	0.0225	90±6	0.6±0.3	515±55	1569±6.1
							Σ = 3360
Płaska (blisko powierzchni „120”)							
Aug-13	Ao 0-3 cm mech*, ściółka	45.9	0.0289	76±3	<0.7	119±14	121±3.9
Aug-14	A1 3-7 cm.	96.3	0.0289	173±5	1.1±0.2	351±16	575±2.7
							Σ = 700
Lipsk (blisko pow. „131”)							
Aug-18	A0l 0-2 cm	48.7	0.0289	229±6	0.7±0.3	109±9	386±2.7
Aug-19	A0f 2-4 cm	98.7	0.0289	316±6	2.1±0.2	330±13	1079±2.0
Aug-20	A1 4-8 cm	326	0.0289	197±9	1.4±0.2	371±27	2227±4.6
							Σ = 3690
Mikaszówka-Jazy, las koło pola namiotowego							
Aug-21	0-3 cm.	23	0.0289	243±6	<2.4	131±23	193±2.4
Aug-22	3-5 cm	66.4	0.0289	319±13	2.6±0.4	82±11	732±4.2
Aug-23	5-8 cm	159.9	0.0225	142±6	1.0±0.2	210±15	1009±4.3
							Σ = 1960

*Drabik (*Climacium dendroides*).

Tabela 26. Wyniki zawartości ^{154}Eu i ^{155}Eu i odpowiednie aktywności powierzchniowe tych radionuklidów (na dzień 1.08.1999).

kod próbki	^{154}Eu (123 keV)	^{154}Eu (1275 keV) (Bq/kg s.m. $\pm 1\sigma$)	^{155}Eu (105keV)	^{154}Eu (Bq/m ² $\pm 1\sigma$)	^{155}Eu
Aug-1	<0.9	<3.3	<2.5	<3.3	<3.4
Aug-2	<0.1	<0.4	0.56 \pm 0.35	<4.0	7.0 \pm 4.4
Aug-3	<0.2	0.6	<0.5	<4.6	<4.8
Aug-4	<0.3	<1	0.8	<4.6	<4.9
Aug-5	<0.2	<0.9	0.7	<4.8	<5.0
Aug-6	<0.2	<0.7	0.5	<5.1	<5.4
Aug-7	<1.2	<4.4	3.4	<4.3	<4.6
Aug-8	0.6 \pm 0.2	0.4 \pm 0.4	0.7 \pm 0.3	6.1 \pm 3.5	8.2 \pm 4.0
Aug-10	<4.3	<15	<12	<14	<15
Aug-11	1.8 \pm 0.5	1.7 \pm 1.0	1.9 \pm 0.9	5.9 \pm 2.7	6.6 \pm 3.1
Aug-12	<0.3	<0.9	<0.7	<12	<13
Aug-13	<1.2	<4.4	<3.4	<5.1	<5.4
Aug-14	<0.5	<2.0	<1.5	<4.8	<5.1
Aug-18	<0.6	<2.0	<1.6	<2.5	<2.7
Aug-19	1.7 \pm 0.5	2.9 \pm 1.6	<1	7.8 \pm 4.0	<3.3
Aug-20	1.0 \pm 0.2	1.0 \pm 0.3	<0.2	11.3 \pm 2.8	<2.2
Aug-21	<0.9	<5.5	<4.3	<3.3	<3.4
Aug-22	1.2 \pm 0.6	<3.1	<2.4	2.6 \pm 0.3 [#]	<5.5
Aug-23	0.6 \pm 0.4	<1.1	<0.9	4.3 \pm 1.6 [#]	<6.4

#-obliczone tylko na podstawie linii 123 keV, w pozostałych przypadkach na podstawie średniej z obu linii.



Rys. 45. Widmo promieniowania gamma próbki ściółki leśnej (kod: Aug-20) pobranej w 1999 w okolicach miejscowości Lipsk w Puszczy Augustowskiej .

W tabeli 28 zestawiono wyniki stosunku aktywności $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$, udziału frakcji czarnobylskiej $^{239+240}\text{Pu}$ (F) oraz depozycji łącznej aktywności emiterów alfa $^{238+239+240}\text{Pu}$ pochodzenia czarnobylskiego w analizowanych próbkach ściółek oraz na badanych powierzchniach. Stosunek aktywności $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ waha się od wartości praktycznie typowej dla opadu globalnego równej 0.054 \pm 0.027 dla próbki Aug-3 do wielkości charakterystycznej dla czarnobylskiego reaktora 0.561 \pm 0.063 dla próbki Aug-11. Obliczona obecnie depozycja łącznej aktywności izotopów

$^{238+239+240}\text{Pu}$ pochodzenia czarnobylskiego mieści się w granicach od 3.6 ± 0.4 do 24.2 ± 3.0 Bq/m², ze średnią wynoszącą 10.5 Bq/m² i odchyleniem standardowym 7.1 Bq/m². Analogiczne wartości dla tego obszaru obliczone na podstawie wyników (Tabela 11) pomiarów z roku 1991 wynoszą od 7.3 ± 0.4 Bq/m² do 28.3 ± 1.7 Bq/m², ze średnią 17.3 Bq/m², przy odchyleniu standardowym 7.8 Bq/m². Widoczny jest duży rozrzut wyników scharakteryzowany przez względnie dużą wartość odchylenia standardowego. Jest to zrozumiałe w przypadku depozycji cząstek, co z natury swojej jest procesem niejednorodnym. Uwzględniając to można przyjąć, że wartości średnie są wzajemnie ze sobą zgodne i sugerują średnią depozycję $^{238+239+240}\text{Pu}$ pochodzenia czarnobylskiego w Puszczy Augustowskiej na poziomie zbliżonym do 15 Bq/m².

Tabela 27. Wyniki zawartości ^{238}Pu i $^{239+240}\text{Pu}$ w próbkach ściółek leśnych z Puszczy Augustowskiej w 1999 r.

Kod próbki	Odzysk Y (%)	$^{239+240}\text{Pu}$ (mBq/kg s.m. $\pm 1\sigma$)	^{238}Pu	$^{239+240}\text{Pu}$ (Bq/m ² $\pm 1\sigma$)	^{238}Pu
Aug-1	69.6 \pm 4.3	762 \pm 72	356 \pm 37	1.0 \pm 0.1	0.5 \pm 0.1
Aug-2	99.4 \pm 4.0	705 \pm 62	79 \pm 25	8.9 \pm 0.8	1.0 \pm 0.3
Aug-3	78.3 \pm 2.6	481 \pm 41	26 \pm 13	10.9 \pm 0.9	0.6 \pm 0.3
			$\Sigma=$	20.8 \pm 1.2	2.1 \pm 0.4
Aug-4	87.7 \pm 3.7	206 \pm 29	31 \pm 20	4.1 \pm 0.6	0.6 \pm 0.4
Aug-5	109.5 \pm 3.8	114 \pm 24	62 \pm 25	3.7 \pm 0.8	2.0 \pm 0.8
Aug-6	70.8 \pm 2.3	61 \pm 19	19 \pm 14	2.5 \pm 0.8	0.8 \pm 0.6
			$\Sigma=$	10.3 \pm 1.3	3.4 \pm 1.1
Aug-7	*	302 \pm 18	114 \pm 10	0.4 \pm 0.1	0.2 \pm 0.1
Aug-8	*	829 \pm 60	206 \pm 10	9.7 \pm 0.7	2.4 \pm 0.1
			$\Sigma=$	10.3 \pm 0.7	2.6 \pm 0.1
Aug-10	86.2 \pm 3.1	128 \pm 19	46 \pm 14	0.1 \pm 0.1	0.0 \pm 0.1
Aug-11	76.9 \pm 3.6	3100 \pm 244	1739 \pm 139	13.8 \pm 1.1	7.7 \pm 0.6
Aug-12	99.7 \pm 4.1	276 \pm 32	54 \pm 18	4.8 \pm 0.6	0.9 \pm 0.3
			$\Sigma=$	18.7 \pm 1.3	8.6 \pm 0.7
Aug-13	78.3 \pm 4.3	127 \pm 14	54 \pm 10	0.2 \pm 0.1	0.1 \pm 0.1
Aug-14	83.2 \pm 4.5	985 \pm 90	361 \pm 40	3.3 \pm 0.3	1.2 \pm 0.1
			$\Sigma=$	3.5 \pm 0.3	1.3 \pm 0.1
Aug-18	*	308 \pm 17	120 \pm 8	0.5 \pm 0.1	0.2 \pm 0.1
Aug-19	*	1220 \pm 57	420 \pm 20	4.2 \pm 0.2	1.4 \pm 0.1
Aug-20	*	1030 \pm 64	310 \pm 24	11.6 \pm 0.7	3.5 \pm 0.3
			$\Sigma=$	16.3 \pm 0.7	4.9 \pm 0.4
Aug-21	88.6 \pm 4.8	530 \pm 51	236 \pm 26	0.4 \pm 0.1	0.2 \pm 0.1
Aug-22	76.4 \pm 5.5	1733 \pm 169	596 \pm 63	4.0 \pm 0.4	1.4 \pm 0.1
Aug-23	72.3 \pm 4.8	3753 \pm 342	423 \pm 50	26.7 \pm 2.4	3.0 \pm 0.4
			$\Sigma=$	31.1 \pm 2.4	4.4 \pm 0.4

* - Brak wartości odzysku – podano łączne aktywności we wszystkich frakcjach otrzymanych w eksperymencie „wymywanie” (opisanego w następnym podrozdziale).

Tabela 28. Wartości stosunku aktywności $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$, procentowy udział $^{239+240}\text{Pu}$ pochodzenia czarnobylskiego (F) oraz całkowita depozycja emiterów alfa plutonu ($^{238+239+240}\text{Pu}$) z opadu czarnobylskiego stwierdzona w próbkach z Puszczy Augustowskiej pobranych w 1999 r.

kod próbki	$^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$	F (%)	$^{238+239+240}\text{Pu}$ z Czarnobyli (Bq/m ²)
Aug-1	0.467±0.066	83.8±12.9	1.3±0.2
Aug-2	0.112±0.037	14.1±7.3	2.3±0.8
Aug-3	0.054±0.027	2.8±5.5	0.9±0.7
		Σ=	4.5±1.1
Aug-4	0.150±0.099	21.7±19.5	1.5±1.0
Aug-5	0.544±0.247	98.8±48.7	5.7±2.7
Aug-6	0.311±0.249	53.2±49.0	2.1±1.8
		Σ=	9.3±3.4
Aug-7	0.377±0.040	66.2±7.9	0.46±0.14
Aug-8	0.248±0.022	40.9±4.4	6.4±0.7
			6.8±0.7
Aug-10	0.359±0.122	62.6±23.9	0.06±0.13
Aug-11	0.561±0.063	102.2±12.4	21.8±2.9
Aug-12	0.196±0.069	30.5±13.6	2.4±0.9
		Σ=	24.2±3.0
Aug-13	0.425±0.092	75.5±18.0	0.25±0.15
Aug-14	0.366±0.053	64.0±10.4	3.3±0.5
		Σ=	3.6±0.6
Aug-18	0.390±0.034	68.6±6.7	0.54±0.14
Aug-19	0.344±0.023	59.7±4.6	3.9±0.3
Aug-20	0.301±0.030	51.2±5.9	9.4±1.1
		Σ=	13.9±1.1
Aug-21	0.445±0.065	79.5±12.8	0.52±0.16
Aug-22	0.344±0.049	59.6±9.7	3.8±0.6
Aug-23	0.113±0.017	14.3±3.5	6.8±1.3
		Σ=	11.1±1.5

W tabeli 29 zestawiono wyniki oznaczeń zawartości ^{90}Sr w próbkach ściółek leśnych i gleb z Puszczy Augustowskiej, pobranych w 1999 roku. Wyniki uzyskane bezpośrednio pochodzą z analiz z wykorzystaniem znacznika ^{85}Sr . W przypadku oznaczeń pochodzących z eksperymentu nad wymywaniem, wydajność była zakładana na poziomie 75%, na podstawie testów przeprowadzonych na ślepych próbkach z dodanym ^{90}Sr . Podane niepewności pomiarowe są jedynie błędami statystycznymi liczb zliczeń. Względnie duże błędy przy oznaczeniach z wykorzystaniem znacznika izotopowego ^{85}Sr są wynikiem niezależnego od autora opóźnienia w pomiarach gamma spektrometrycznych służących wyznaczeniu odzysku (awaria spektrometru), przez co aktywność znacznika uległa znacznemu zmniejszeniu. Zawartości ^{90}Sr wahają się od kilku Bq/kg s.m. do 148±43 Bq/kg s.m. (próbka Aug-11- warstwa 1-3 cm ściółki z miejscowości Rubcewo, południowo-wschodnia część Puszczy Augustowskiej). Aktywności powierzchniowe ^{90}Sr w zawarte w danych warstwach mieszczą się w zakresie od 11±2 Bq/m² do 661±191 Bq/m², natomiast sumaryczne aktywności powierzchniowe dla danych miejsc, w ramach analizowanych głębokości próbkowania, wynoszą od 90±16 Bq/m² dla Płaskiej do 705±191 Bq/m² dla Rubcewa. Jest to znacznie mniej niż nawet pozostałość depozycji z samego tylko globalnego opadu wynosząca w roku 1999 około 1.5 kBq/m² (z początkowej wartości 3.5 kBq/m²). Jest to spowodowane ruchliwością Sr w środowisku z jednej strony i płytkością pobierania próbek ściółek leśnych z drugiej strony.

W tabeli 30 zestawiono wyniki oznaczeń aktywności ^{241}Am w próbkach ściółek z Puszczy Augustowskiej z 1999 r. Wyniki uzyskano tylko dla próbek z eksperymentu nad wymywaniem różnych radionuklidów, dotyczą więc tylko pięciu próbek. Stwierdzono względnie niewielkie aktywności, od 0.59 ± 0.28 Bq/kg s.m. do 1.35 ± 0.21 Bq/kg s.m.. Zawartość ^{241}Am w badanych warstwach waha się w granicach od 16.5 ± 2.5 Bq/m² do 19 ± 2.5 Bq/m².

Tabela 29. Wyniki zawartości ^{90}Sr w próbkach ściółek leśnych i gleb z Puszczy Augustowskiej pobranych w 1999 r.

Kod próbki	Masa [g]	Odzysk [%]	^{90}Sr (Bq/kg s.m. $\pm 1\sigma$)	^{90}Sr (Bq/m ² $\pm 1\sigma$)
Aug-1	32.3	120 \pm 24	24.4 \pm 4.8	33 \pm 7
Aug-2	10.7	72 \pm 19	4.5 \pm 1.2	57 \pm 15
Aug-3	11.3	89 \pm 20	9.0 \pm 2.0	204 \pm 45
			$\Sigma=$	294\pm48
Aug-4	13.5	142 \pm 21	5.0 \pm 0.7	100 \pm 14
Aug-5	11.2	106 \pm 23	4.5 \pm 1.0	145 \pm 32
Aug-6	10.8	100 \pm 17	5.1 \pm 0.9	206 \pm 36
			$\Sigma=$	451\pm50
Aug-7	38.8	*	24.7 \pm 0.5	33 \pm 1
Aug-8	336.5	*	9.9 \pm 0.4	115 \pm 5
			$\Sigma=$	148\pm5
Aug-10	27	103 \pm 21	11.1 \pm 2.3	11 \pm 2
Aug-11	26.5	72 \pm 21	149 \pm 43	661 \pm 191
Aug-12	10.6	99 \pm 16	5.2 \pm 0.9	90 \pm 14
			$\Sigma=$	762\pm191
Aug-13	45.2	91 \pm 20	14.6 \pm 3.2	23 \pm 5
Aug-14	16.2	109 \pm 25	20.1 \pm 4.6	67 \pm 15
			$\Sigma=$	90\pm16
Aug-18	48.7	*	10.5 \pm 0.4	18 \pm 1
Aug-19	98.7	*	32.3 \pm 0.4	110 \pm 1
Aug-20	326.0	*	15.2 \pm 0.4	171 \pm 5
			$\Sigma=$	299\pm5
Aug-21	24.6	113 \pm 21	38.3 \pm 7.0	30 \pm 6
Aug-22	39.3	91 \pm 18	69.7 \pm 13.9	160 \pm 32
Aug-23	16	86 \pm 19	24.0 \pm 5.4	171 \pm 38
			$\Sigma=$	361\pm50

Tabela 30. Wyniki oznaczeń całkowitych aktywności ^{241}Am (łącznej aktywności wszystkich frakcji w eksperymencie nad wymywaniem – opis w następnym podrozdziale). Podany odzysk to średnia i odchylenie standardowe dla 4 frakcji danej próbki.

kod próbki	Głębokość warstwy (cm)	Średni odzysk (%)	^{241}Am (Bq/kg s.m. $\pm 1\sigma$)	^{241}Am (Bq/m ² $\pm 1\sigma$)
Aug-7	0-2	39.3 \pm 5.2	0.64 \pm 0.29	0.9 \pm 0.4
Aug-8	2-4	48.2 \pm 6.8	1.34 \pm 0.20	15.6 \pm 2.4
			$\Sigma=$	16.5 \pm 2.5
Aug-18	0-2	80.3 \pm 7.4	0.59 \pm 0.28	1.0 \pm 0.5
Aug-19	2-4	55.2 \pm 6.2	0.78 \pm 0.23	2.7 \pm 0.8
Aug-20	4-6	61.8 \pm 7.2	1.35 \pm 0.21	15.3 \pm 2.3
			$\Sigma=$	19.0 \pm 2.5

Porównanie aktywności ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$, ^{90}Sr oraz ^{137}Cs w omawianych tu próbkach ściółek leśnych pozwala zauważyć najściślejszy związek pomiędzy aktywnościami ^{238}Pu i ^{90}Sr . Kwadrat współczynnika korelacji Pearsona R^2 wynosi w tym przypadku 0.807, przy poziomie istotności $p < 0.0001$. Korelacja ta jest więc wysoka i istotna. W tabeli 31 zestawiono kwadraty współczynników korelacji. Najslabiej skorelowany jest ^{137}Cs z ^{90}Sr . Te cechy stają się zrozumiałe, w świetle udawadnianej tu hipotezy, że przeważająca część ^{90}Sr i ^{238}Pu pochodzi z „gorących cząstek typu paliwowego”, $^{239+240}\text{Pu}$ pochodzi zarówno z katastrofy czarnobylskiej, dokładniej z opadu „gorących cząstek”, jak i z testów z bronią jądrową. ^{137}Cs pochodzi zarówno z opadu „gorących cząstek” jak i późniejszych depozycji radiocezu z opadu czarnobylskiego w kolejnych dniach trwania awarii, może pochodzić też w śladach z opadu globalnego. Wyniki te sugerują, że w badanych płytko położonych warstwach ściółki ^{90}Sr z opadu globalnego jest obecny w znacznie mniejszym stopniu niż ^{90}Sr z opadu czarnobylskiego.

Tabela 31. Wartości kwadratów współczynników korelacji Pearsona i poziomów istotności (p) pomiędzy aktywnościami ^{137}Cs , ^{90}Sr , $^{239+240}\text{Pu}$ i ^{238}Pu w próbkach ściółek leśnych z Puszczy Augustowskiej, pobranych w 1999.

	^{238}Pu	$^{239+240}\text{Pu}$	^{90}Sr	^{137}Cs
^{238}Pu	1	0.401 (p=0.0036)	0.807 (p<0.0001)	0.434 (p=0.0022)
$^{239+240}\text{Pu}$		1	0.258 (p=0.0265)	0.344 (p=0.0083)
^{90}Sr			1	0.190 (p=0.0618)
^{137}Cs				1

III.2.3. Wymywalność radionuklidów ze ściółek leśnych

Pięć próbek ściółek leśnych: oznaczonych „Aug” z nr. 7, 8, 18, 19 i 20 (tabela 25), zebrane latem 1999 roku w Puszczy Augustowskiej w pobliżu miejscowości Płaska (pierwsze dwie) i Lipsk (pozostałe trzy) poddano szczególnej procedurze analitycznej [Mietelski, 2002], której celem było określenie wymywalności różnymi mediami radionuklidów pochodzących z gorących cząstek.

Próbki po zmieleniu próbki umieszczono w oddzielnych plastikowych pojemnikach o objętości 1.5 dm³. Każdą z nich zalano (750 ml) rozcieńczonym roztworem kwasu solnego w dejonizowanej wodzie. Stężenie HCl dobrano tak, by pH=3. Następnie poddano je kilkuminutowym wstrząśnięciu i po 10 minutach ustalono pH na równe 3.5 za pomocą kwasu solnego. Całość wytrząsano przez 10 min i pozostawiono na kilkanaście godzin, kilkakrotnie ponawiając wytrząsanie. Próbki odsączono najpierw na szklanym filtrze zgrubnego oczyszczania (Whatman EPM 1000). Następnie przesącz dodatkowo przepuszczano przez mylarowe sączi membranowe o średnicy porów 0.7 μm. Przesącz stanowi w przybliżeniu tzw. *frakcję kwasu fulwowego* [Filella i inni, 1995; Fujikawa i inni, 1999].

Osad na sączkach membranowych wymyty z próbek Aug 7 i 8 analizowano na spektrometrze promieniowania gamma z detektorem studzienkowym (umieszczając zwinięte sączi we wnętrzu studzienki). Nie stwierdzono aktywności odbiegającej istotnie od poziomu tła. Rozdrobnione sączi wraz z zatrzymanym na nich materiałem połączono z powrotem z odpowiednimi próbkami. Próbki delikatnie wysuszone pod promiennikiem promieni podczerwonych i ponownie umieszczono w plastikowych pojemnikach o objętości 1.5 dm³. Zalano je roztworem o objętości 750 ml rozcieńczonego amoniaku w dejonizowanej wodzie o pH=9. Po zalaniu próbek i energicznym ich wstrząsaniu odczekiwano 10 minut po czym ustalono pH na 9 za pomocą amoniaku. Całość wytrząsano na wytrząsarce przez kolejne 10 min i pozostawiono na kilkanaście godzin. Z roztworami o pH=9 postąpiono analogicznie jak przy wymywaniu roztworem o pH=3.5, z tą tylko różnicą, że zarówno filtry szklane jak i sączi membranowe dla próbek Aug 7 i 8 odpowiednio połączono i potraktowano jako kolejne frakcje, a więc oprócz pomiaru gamma spektrometrycznego wykonano w nich analizy radiochemiczne. Nie stwierdzono na tych filtrach mierzalnych poziomów aktywności. Natomiast uzyskany przesącz z filtrów membranowych stanowi w przybliżeniu tzw. *frakcję kwasu humusowego* [Filella i inni, 1995; Fujikawa i inni, 1999].

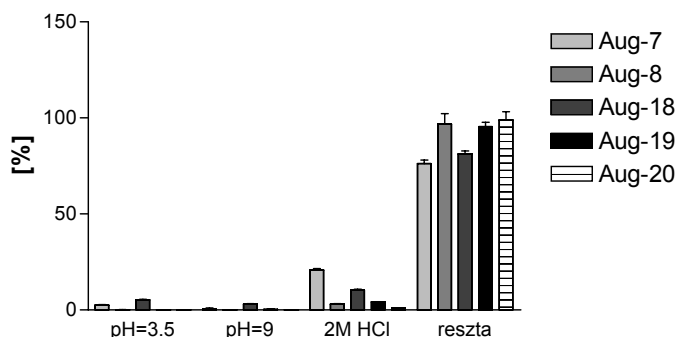
Próbki po ponownym wysuszeniu umieszczono znów w pojemnikach 750 ml i całość procedury powtórzono raz jeszcze, ale tym razem używając roztworu 2 M HCl. Uzyskano w ten sposób *frakcję rozpuszczalną*.

Pozostały materiał próbek (*frakcja trudno rozpuszczalna*) wysuszono i poddano pomiarowi z wykorzystaniem spektrometru promieniowania gamma. Następnie spopieleno próbki w piecu muflowym w temperaturze 600° C. Popiół znów zanalizowano na spektrometrze promieniowania gamma.

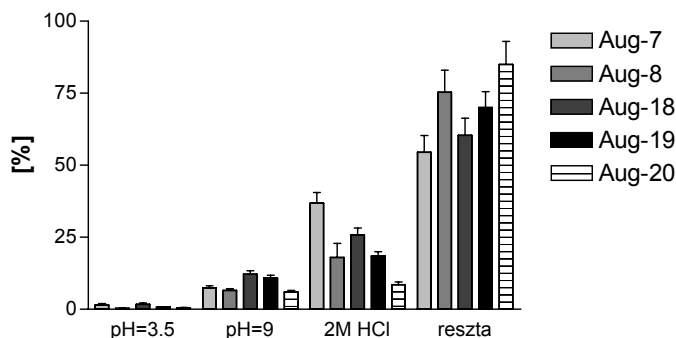
Wszystkie uzyskane roztwory odparowano i wykonano ich pomiary gamma spektrometryczne. Następnie dodano po 25 µl roztworów znaczników: ²³⁶Pu (zawierający również znaną aktywność ²³²U), ²⁴³Am i ¹⁴⁸Gd. Dodawano również 500 µl mianowanego roztworu- nośnika stabilnego strontu o stężeniu 10 mg/ml. Odparowany materiał poszczególnych frakcji mineralizowano na gorąco za pomocą stężonych kwasów: HNO₃ i HCl dodając małe ilości H₂O₂ i HClO₄. Ta wstępna procedura mineralizacji zastępowała stosowane zazwyczaj spopielenie próbek w piecu muflowym. Po przeprowadzeniu do 100 ml 1 M HNO₃ roztwór odwirowywano przy 3000 obr/min. Śladowy osad rozpuszczano na gorąco w 5 ml 40% HF, po czym mineralizowano je używając HNO₃, HCl i H₃BO₃. Rozpuszczony w 5 ml 1 M HNO₃ osad łączono z oryginalnym roztworem uzyskanym z danej frakcji. Dalsze postępowanie z frakcjami próbek uzyskanymi pierwotnie jako roztwory było identyczne jak z typową próbką ściółki po jej mineralizacji (Aneks 2).

Porcje odważone z popiołu pobrano do dalszych analiz radiochemicznych. Dodano do nich te same ilości tych samych znaczników jak w przypadku innych frakcji próbek i tą samą ilość nośnika stabilnego strontu. Zastosowano standardową procedurę mineralizacji na gorąco: HF, HNO₃, HCl i H₃BO₃ - patrz Aneks 2. Po mineralizacji roztwór (w postaci 1 M HNO₃) filtrowano na filtrze bibułowym. Masa zatrzymanego, nie rozpuszczonego osadu nie przekraczała kilku miligramów.

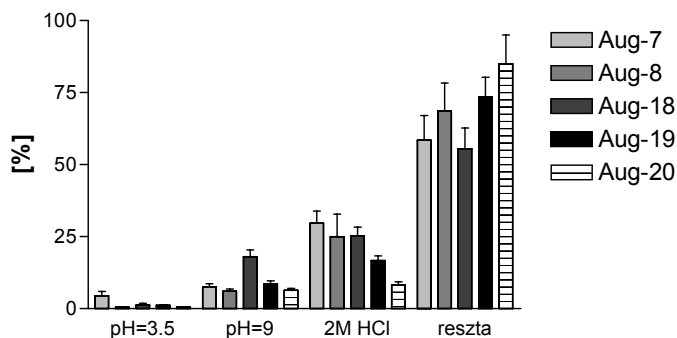
Wyniki eksperymentu – procentowe udziały aktywności danych radionuklidów obecne w poszczególnych wymytych frakcjach i w trudno rozpuszczalnej pozostałości przedstawiono na rysunkach 46-54, kolejno dla ¹³⁷Cs, ²³⁹⁺²⁴⁰Pu, ²³⁸Pu, ⁹⁰Sr, ²⁴¹Am, ²³⁸U, ²³⁴U, ²³²Th, ²³⁰Th.



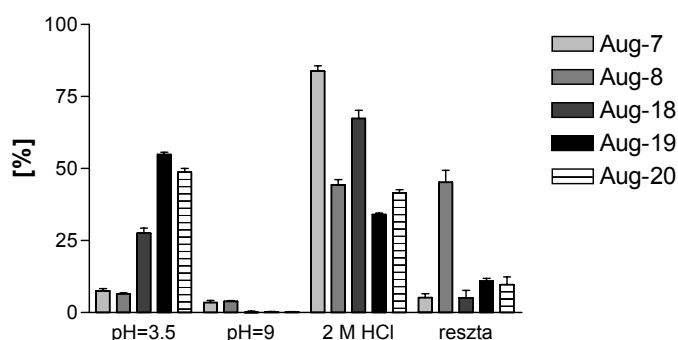
Rys. 46 . Procentowy udział całkowitej aktywności ¹³⁷Cs próbek ściółek leśnych obserwowany w poszczególnych frakcjach.



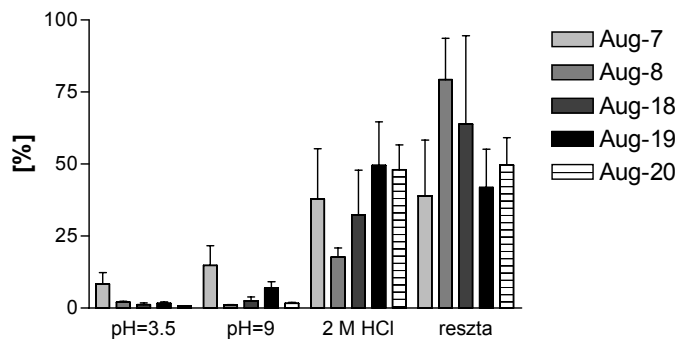
Rys. 47. Procentowy udział całkowitej aktywności ²³⁹⁺²⁴⁰Pu próbek ściółek leśnych obserwowany w poszczególnych frakcjach.



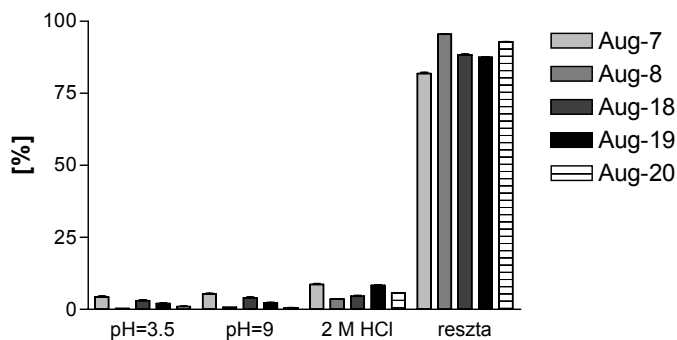
Rys. 48. Procentowy udział całkowitej aktywności ^{238}Pu próbek ściółek leśnych obserwowany w poszczególnych frakcjach.



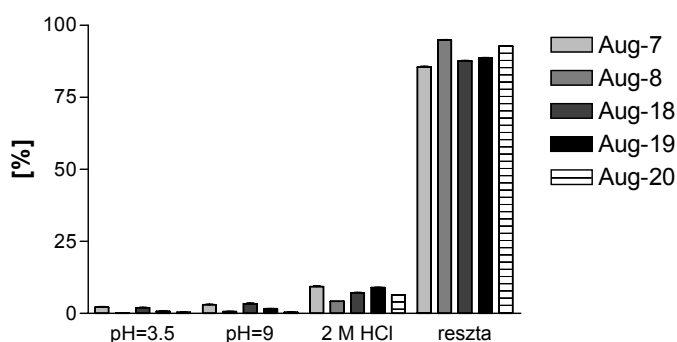
Rys. 49. Procentowy udział całkowitej aktywności ^{90}Sr próbek ściółek leśnych obserwowany w poszczególnych frakcjach.



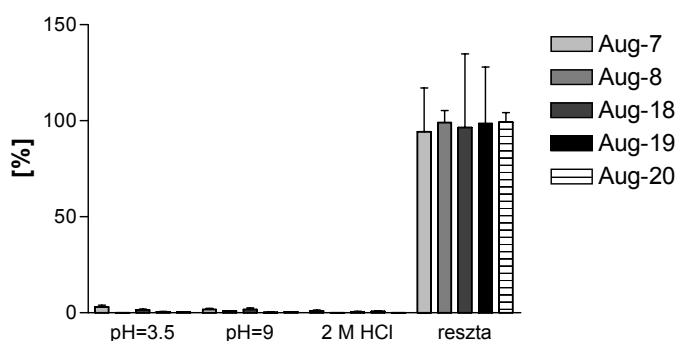
Rys. 50 . Procentowy udział całkowitej aktywności ^{241}Am próbek ściółek leśnych obserwowany w poszczególnych frakcjach.



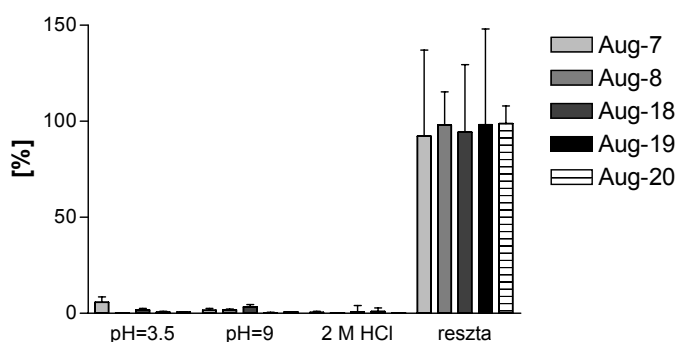
Rys. 51 . Procentowy udział całkowitej aktywności ^{238}U próbek ściółek leśnych obserwowany w poszczególnych frakcjach.



Rys. 52 . Procentowy udział całkowitej aktywności ²³⁴U próbek ściółek leśnych obserwowany w poszczególnych frakcjach.



Rys. 53 . Procentowy udział całkowitej aktywności ²³²Th próbek ściółek leśnych obserwowany w poszczególnych frakcjach.



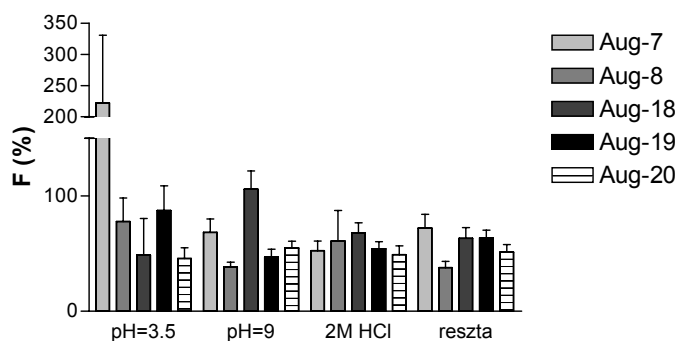
Rys. 54 . Procentowy udział całkowitej aktywności ²³⁰Th próbek ściółek leśnych obserwowany w poszczególnych frakcjach.

Różnicę w udziale poszczególnych frakcji zawierających analizowane radionuklidy wynikają z właściwości chemicznych tych pierwiastków. Praktycznie cały ¹³⁷Cs pozostawał we frakcji trudno rozpuszczalnej („reszta”), podczas gdy ⁹⁰Sr był wmywany w znaczących ilościach nawet rozcieńczonym kwasem solnym (frakcja kwasu fulwowego). Cs i Pu z warstw powierzchniowych (obumarły materiał rośliny) wydaje się być łatwiej wmywalny za pomocą 2 M HCl niż z warstw głębszych (zawierającej humus). Odwrotnie jest dla Am. Najciekawszą obserwacją wydaje się znaczący udział Pu wmywanego w zasadowych warunkach przy pH=9. Choć przy sączeniu stosowano filtry o trochę za dużych średnicach porów (równych 0.7 μm), to nie wmywanie w tych warunkach ⁹⁰Sr i ¹³⁷Cs sugeruje, że wmyty Pu nie jest związany z cząstkami (ziarnami). Wiadomo, że w tych warunkach Pu niezależnie od stopnia utlenienia jest nierozpuszczalny. Obecność Pu we frakcji pH=9 tłumaczy hipoteza o kompleksowaniu jonów Pu przez kwasy humusowe [Alberts i inni, 1989; Mahara i Kudo, 1995; Zhang i inni, 1996; Fujikawa i inni, 1999; Sokolik i inni 2001a, 2001b, 2002]. W rezultacie w środowisku kwaśnym Pu jest silnie związany z substancjami organicznymi, natomiast w środowisku zasadowym, dzięki rozpuszczalności w tych warunkach kwasów humusowych Pu

może stawać się bardziej ruchliwy. Mobilność ta może się ujawniać np. przy użyciu gleby piaszczystej torfem a następnie neutralizowaniu czy też alkalizowaniu gleby wapniem. W tych warunkach jony Pu^{+4} skompleksowane przez kwasy humusowe mogą stać się najłatwiej biodostępne. Podobna alkalizacja może wystąpić po pożarze lasu. Fulwowy kwas (rozpuszczalny w kwaśnym środowisku) nie kompleksuje aż tak efektywnie Pu, dlatego w torfach czy ściółkach leśnych, gdzie pH jest niskie (nie większe od 5) pluton pozostaje mało mobilny.

Zarówno izotopy toru jak i uranu są znacznie trudniej wymywalne od plutonu. Pomimo podobieństwa chemicznego (zwłaszcza toru) do plutonu własności środowiskowe są drastycznie inne. Brak rozpuszczalności toru i uranu najprawdopodobniej wynika z wbudowania („zatopienia”) tych pierwiastków w odpornych chemicznie ziarnach mineralnych, podczas gdy pluton czy ameryk są raczej tylko zaabsorbowane na powierzchniach ziaren.

Na rysunku 55 przedstawiono procentowy udział czarnobylskiego $^{239+240}\text{Pu}$ (F, wzór {6}) w poszczególnych wymytych frakcjach. Wynika z niego, że czarnobylski Pu jest obecny w trochę większym stopniu w warstwie powierzchniowej (Aug-7, Aug-18) niż w głębszych (Aug-8, Aug-20). Na poprzednich rysunkach widać, że Pu jest nieznacznie łatwiej wymywalny z warstw powierzchniowych, co sugeruje, że czarnobylski Pu jest być może nawet trochę łatwiej wymywalny od pozostającego w środowisku kilkadziesiąt lat dłużej Pu z opadu globalnego.



Rys. 55. Procentowy udział czarnobylskiego $^{239+240}\text{Pu}$ (F) w poszczególnych frakcjach analizowanych próbek ściółek leśnych.

III.2.4. Próbkę ściółek z roku 2001

Okazję do kolejnej weryfikacji i uzupełnienia wyników przyniósł rok 2001. W ramach projektu badawczego KBN nr 6 P04G 07520, przy współpracy z Wydziałem Leśnym AR w Krakowie, pobrano kolejne próbki ściółek leśnych, roślin oraz uzupełniające próbki owadów opisane w następnych podrozdziałach. Próbkę pobierano w lecie 2001 w Borach Niemodlińskich (Tułowice), Beskidzie Żywieckim (Węgierska Górka) i Puszczy Augustowskiej (Płaska). Las w Węgierskiej Górze był przedmiotem badań prowadzonych w IFJ we współpracy z AR w Krakowie już w roku 1987 [Jasińska i inni, 1990], a następnie w 1993 [Mietelski i inni, 1996 b]. Wyniki zawartości Pu, Am i Sr w próbkach z roku 1987, uzyskane w czasie stażu autora w Laboratorium IAEA w Seibersdorfie, opublikowano w pracy [Mietelski i inni, 1993]. Tułowice to powierzchnia oznaczona kodem 203 w pracy doktorskiej autora [Mietelski, 1994], a Płaska to powierzchnia 120 tamże. Badania materiałów roślinnych i zwierzęcych (owady) omówione zostaną poniżej w jednym z następnych rozdziałów.

Pobrano warstwy O_L , O_F , O_H ściółki leśnej, warstwę powierzchniową A gleby (w przypadku Tułowic pobrano ponadto warstwę głębszą AE_{cs}). Należy tu wyjaśnić, że w ciągu ostatnich kilkunastu lat zmieniła się nomenklatura opisująca warstwy ściółek, poprzednio używane oznaczenie A_0 zastąpiło oznaczenie O (z rozróżnieniem na podwarstwy: L – opadłych liści i szpilek, F – fermentacyjną), a warstwę A_1 warstwa O_H . Ściółki i glebę pobierano z powierzchni 19.5 cm x 19.5 cm.

Wysuszone w 105°C próbki ściółek leśnych shomogenizowano i przeprowadzano pomiary gamma spektrometryczne zgodnie z procedurą opisaną w pracy [Mietelski, 1994]. Następnie próbki

spopielano i przeprowadzano analizy radiochemiczne zgodnie ze standardową procedurą opisaną w Aneksie 2.

Wyniki zawartości radionuklidów oraz ich aktywności powierzchniowe uzyskane dla próbek części profilu glebowego zestawiono odpowiednio w tabelach 32 i 33.

Wydaje się, że większość ^{137}Cs jest obecna w warstwach O_H i O_F ściółki. Aktywność ^{40}K wzrasta z głębokością warstw, a ^{90}Sr zmniejsza się z głębokością. Większość zmierzonej aktywności Pu znajdowała się w warstwach O_H i A (Tułowice).

Małe zawartości ^{238}Pu w Tułowicach i Węgierskiej Górcie wskazują na bardzo mały udział opadu czarnobylskiego Pu w Polsce południowej. W warstwie O_F ściółki w Płaskiej udział Pu z Czarnobyli jest łatwo zauważalny. W tabeli 34 zestawiono wyniki ilościowej analizy udziału frakcji czarnobylskiej wykonaną w oparciu o analizę stosunków aktywności $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ i $^{243+244}\text{Cm}/^{241}\text{Am}$.

Tabela 32. Wyniki zawartości ^{137}Cs , ^{40}K , ^{90}Sr , $^{239+240}\text{Pu}$, ^{238}Pu , ^{241}Am , $^{243+244}\text{Cm}$ w warstwach ściółek leśnych i gleby pobranych w 2001 r. (Mietelski i inni, 2003c).

Miejsce/warstwa	współ. pow. [kg/m ²]	^{137}Cs Bq/kg s.m. $\pm 1\sigma$	^{40}K Bq/kg s.m. $\pm 1\sigma$	^{90}Sr Bq/kg s.m. $\pm 1\sigma$	$^{239+240}\text{Pu}$ Bq/kg s.m. $\pm 1\sigma$	^{238}Pu mBq/kg s.m. $\pm 1\sigma$	^{241}Am mBq/kg s.m. $\pm 1\sigma$	$^{243+244}\text{Cm}$ mBq/kg s.m. $\pm 1\sigma$
TUŁOWICE								
O_L (0-2cm)	2.02	82±2	42±9	10±1	48±5	5±1		
O_F (2-4 cm)	2.15	163±5	32±8	11±2	107±8	6±2	31±16	<2
O_H (4-6 cm)	3.35	786±17	36±8	20±3	2430±181	169±18		
A (6-8 cm)	11.03	358±9	107±9	5±1	3250±233	136±24	1260±128	<10
AE_{es} (8-11 cm)	19.75	101±2	106±10	<1	415±41	9±8	220±58	<6
WĘGIERSKA GÓRKA								
O_L (0-1 cm)	0.92	41±2	30±16	11±1	670±47	23±9	233±32	<3
O_F (1-3 cm)	2.07	185±6	68±16	10±1	2250±187	89±16		
O_H (3 – 7 cm)	2.56	394±11	233±26	8±1	10860±614	293±29		
A (7-12 cm)	3.27	189±4	313±29	2±0	5080±335	148±21		
PŁASKA								
O_L +mech* (0-3 cm)	0.69	132±5	71±25	18±2	322±27	32±12	172±18	5±2
O_F (3-7 cm)	2.65	346±10	105±21	64±7	4315±289	1529±12	2980±228	66±9
O_H (7-9 cm)	3.68	197±6	169±23	60±8	8379±478	637±45	2380±198	21±6
A (9-13 cm)	10.75	28±1	293±27	8±1	581±55	53±32	184±35	18±10

*Drabik (*Climacium dendroides*).

Zawartość $^{239+240}\text{Pu}$ równa 10.86 ± 0.61 Bq/kg s.m., znaleziona obecnie dla warstwy O_H w Węgierskiej Górcie jest dokładnie równa aktywności $^{239+240}\text{Pu}$ znalezionej w A_1 w 1987 [Mietelski i inni, 1993], gdzie stwierdzono 10.8 ± 0.4 Bq/kg s.m.. Podobnie obecna warstwa O_F charakteryzuje się taką samą zawartością $^{239+240}\text{Pu}$ jak poprzednio A_o . Odpowiednio dla lat 1987 i 2001 te wielkości były równe: 2.25 ± 0.19 Bq/kg s.m. i 2.19 ± 0.12 s.m. Bq/kg. Natomiast obecnie zmierzono aktywności ^{238}Pu są mniejsze o czynnik trzy od zmierzonych uprzednio. Można to wyjaśnić zakładając, że poziom aktywności Pu w ściółce jest skutkiem dynamicznej równowagi pomiędzy strumieniem Pu w głąb gleby (z uwzględnieniem powolnej zamiany ściółki w glebę) i strumieniem powrotnym wywołanym poborem korzeniowym i opadaniem martwych części roślin z powrotem na ściółkę. Mechanizm ten prowadziłby do uśrednienia wartości stosunku aktywności $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ w obrębie profilu glebowego. Aktywności ^{137}Cs na wszystkich trzech badanych powierzchniach są obecnie niższe o czynnik od dwóch do czterech, co jest prawdopodobnie wywołane eliminacją ^{137}Cs poprzez sorpcję na minerałach ilastych w głębszych niż badane warstwach. Mechanizm ten wydaje się nie działać dla Pu. Aktywności ^{90}Sr w obecnej warstwie O_H i poprzedniej A_1 [Mietelski i inni, 1993] są zbliżone, ale w warstwie powierzchniowej obecnie jest go czterokrotnie mniej.

Tabela 33. Aktywności powierzchniowe zbadanych części profili glebowych pobranych w 2001 r. (Mietelski i inni, 2003 c.)

Miejsce	^{137}Cs	^{40}K	^{90}Sr	$^{239+240}\text{Pu}$	^{238}Pu	^{241}Am	$^{243+244}\text{Cm}$
(Bq/m ² ±1σ)							
TUŁOWICE (0-11 cm)	9100±211	3550±360	166±47	52.5±4.0	2.2±0.5		
WĘGIERSKA GÓRKA (0-12 cm)	2050±56	1790±209	58±6	49.7±3.1	1.4±0.2		
PŁASKA (0-13 cm)	2030±63	4100±450	490±60	48.7±3.1	7.0±8.4	18.7±1.7	0.45±0.16

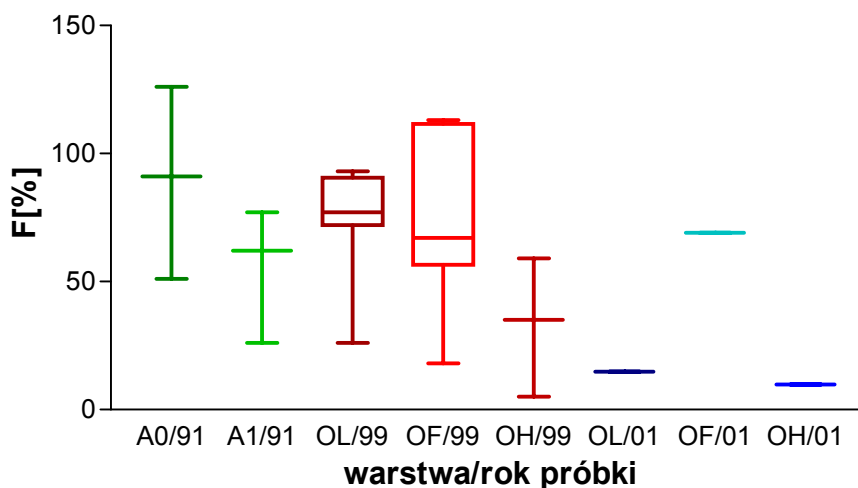
Tabela 34. Analiza udziału frakcji czarnobylskiej $^{239+240}\text{Pu}$ (F_{Pu}) oraz ^{241}Am (F_{Am}) w próbkach ściółek i gleb leśnych z roku 2001.

Miejsce/warstwa	Stos. aktyw. $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$	F_{Pu} (%)	$^{243+244}\text{Cm}/^{241}\text{Am}$	F_{Am} (%)	$^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$ (tylko frakcje Czarnobylskie)
TUŁOWICE					
O _L	0.10 ±0.02	15.8 ±5.6			
O _F	0.06 ±0.02	5.5 ±4.8			
O _H	0.07 ±0.01	8.4 ±3.2			
A	0.04 ±0.01	2.5 ±3.1			
AE _{es}	0.02 ±0.02	0.0 ±4.8			
WĘGIERSKA GÓRKA					
O _L	0.03 ±0.01	0.9 ±3.9			
O _F	0.04 ±0.01	2.0 ±3.0			
O _H	0.0027 ±0.003	0.0 ±2.6			
A	0.06 ±0.03	7.0 ±6.4			
PŁASKA					
O _L +mech	0.10 ±0.04	14.8 ±8.5	0.029 ±0.012	58 ±24	2.1 ±0.5
O _F	0.35 ±0.04	69.0 ±8.3	0.022 ±0.003	44 ±7	0.44 ±0.10
O _H	0.08 ±0.01	9.8 ±2.9	0.009 ±0.003	18 ±5	0.51 ±0.22
A	0.09 ±0.06	13 ±12	0.098 ±0.057	196 ±115	5 ±5

Porównanie wyników dla Płaskiej z roku 1991 i 2001 ujawnia podobne cechy jakie zaobserwowano dla Węgierskiej Górk. Stężenie $^{239+240}\text{Pu}$ w zbadanych warstwach pozostaje właściwie niezmienną, natomiast zawartość ^{238}Pu są mniejsze. Dla próbki z 1991 zawartość $^{239+240}\text{Pu}$ wynosiła 3.98±0.33 Bq/kg s.m. i 6.88±0.53 s.m. Bq/kg s.m., kolejno dla A₀ i A₁, podczas gdy obecnie wynosi 4.315±0.289 Bq/kg s.m. i 8.379±0.478 Bq/kg s.m. dla warstw O_F i O_H. Stężenia ^{238}Pu w 1991 wynosiły 1.8±0.2 Bq/kg s.m. i 2.17±0.22 Bq/kg s.m. dla A₀ i A₁. Obecnie zmierzono zawartości niższe w obu warstwach, kolejno: 1.529±0.123 Bq/kg s.m. i 0.637±0.045 Bq/kg s.m. dla O_F i O_H. W związku z tym oszacowany procentowy udział $^{239+240}\text{Pu}$ z Czarnobyli zmienia się, co zilustrowano na rysunku 56. Można zauważyć, że warstwa powierzchniowa ma obecnie (1999 i 2001) mniej Pu z Czarnobyli niż było to w roku 1991. Efekt ten staje się zrozumiały w świetle opisanego w dalszej części pracy faktu obecności Pu wyłącznie z globalnego opadu w szpilkach drzew z Płaskiej. Opadłe na ściółkę i tworzące jej nową warstwę O_L szpilki „rozcieńczają” czarnobylski Pu. Obecnie znajduje się on głównie w warstwach O_F oraz O_H ściółki.

Aktywności ^{90}Sr dla próbek z Płaskiej były znacząco wyższe niż dla dwóch pozostałych miejsc pobierania próbek (Tułowic i Węgierskiej Górk), co nie było niespodzianką w świetle

wykonanych wcześniej pomiarów [Mietelski i Vajda, 1977; Mietelski i inni, 2001], opisanych powyżej. Ta sama przyczyna, czyli opad czarnobylskich „gorących cząstek” spowodował wzrost wartości stosunku aktywności $^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$ dla próbek z Płaskiej. Przekracza on wyraźnie wartość 0.3 typową dla opadu globalnego [UNSCEAR, 1993].



Rys. 56. Zmiany czasowe procentowego udziału czarnobylskiego $^{239+240}\text{Pu}$ (F) w badanych warstwach ściółek leśnych z Puszczy Augustowskiej z lat 1991, 1999 i 2001.

Tabela 34 zawiera wyniki wartości stosunków aktywności $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ i $^{243+244}\text{Cm}/^{241}\text{Am}$, oraz obliczone wartości procentowego udziału frakcji czarnobylskiej F_{Pu} (wzór {6}) oraz F_{Am} , analogicznie obliczonego na podstawie stosunku aktywności $^{243+244}\text{Cm}/^{241}\text{Am}$.

Pluton i ameryk (wraz z kiurem) pochodzenia czarnobylskiego jest wyraźnie widoczny w próbkach z Płaskiej. Stosunek udziałów czarnobylskich frakcji $^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$ dla warstw O_F or O_H w Płaskiej wynosi tylko 0.5. natomiast w warstwie powierzchniowej wydaje się być większy niż 1. Ta nierównowaga sugeruje większą mobilność Am niż Pu w środowisku, co zaobserwowano też dla wyżej skażonych terenów [Sokolik i inni, 2001a,b].

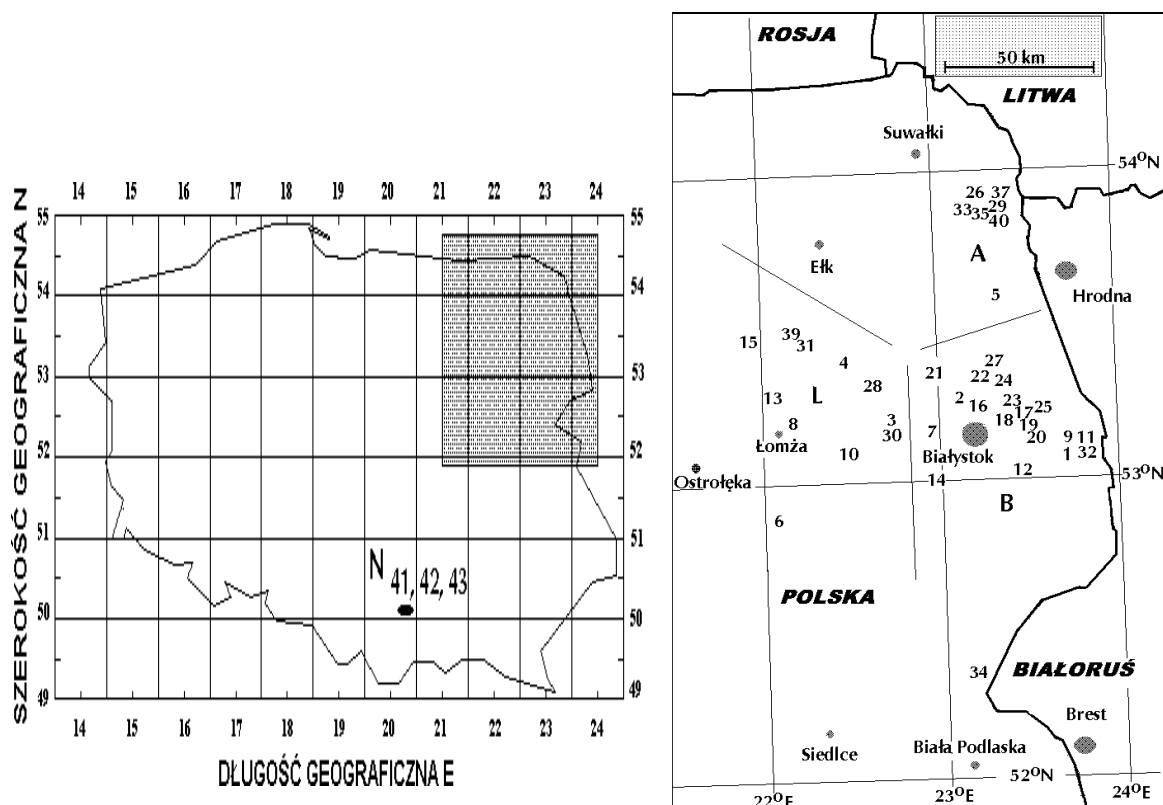
Wyniki otrzymane na podstawie próbek ściółek pobranych w 1999 i 2001 roku potwierdziły wnioski z pomiarów wcześniejszych próbek, zarówno co do samego faktu powszechnej depozycji „gorących cząstek typu paliwowego” jak skali tej depozycji w rejonie Puszczy Augustowskiej.

III.3. BADANIA BIODOSTĘPNOŚCI Pu, Am, ⁹⁰Sr

III.3.1. Dzikie zwierzęta roślinożerne

Jak już wspomniano omawiając właściwości izotopów plutonu, ameryku i ⁹⁰Sr, wszystkie te radionuklidy po wchłonięciu do organizmu są częściowo gromadzone w kościach. W ramach projektu KBN (nr. 6 P04G 09014), we współpracy z Zakładem Biofizyki AM w Białymstoku badano aktywności przede wszystkim ⁹⁰Sr, ²³⁹⁺²⁴⁰Pu i ²⁴¹Am w 39 próbkach kości z przedniej nogi dzikich, dużych roślinożernych zwierząt z Polski północno-wschodniej. Trzy dodatkowe próbki pochodziły z Puszczy Niepołomickiej. Otrzymany materiał pochodził z punktów skupu dziczyzny. Żadne ze zwierząt nie zostało specjalnie zabite dla prowadzonych badań. W danych dostarczanych do punktu skupu dziczyzny zapisane jest ogólnie miejsce zastrzelenia zwierzęcia, jego gatunek i niestety nie zawsze płeć oraz wiek. Badane zwierzęta to jeleń (*Cervus elaphus*), sarna (*Capreolus capreolus*), dzik (*Sus scrofa*) i łoś (*Alces alces*). Otrzymane dane o zwierzętach zestawiono w tabeli 35, a lokalizację miejsc odstrzału przedstawiono na rysunku 57. Numery kodowe nadano w sposób losowy (próbka numer 36 została stracona). Większość próbek pochodziła z sezonu łowieckiego 1997-98, pozostałe z roku 1999. Próbki z Polski północno-wschodniej podzielono na pochodzące z trzech obszarów: Augustów (A), Białystok (B) i Łomża (L). Trzy próbki z Puszczy Niepołomickiej stanowiły oddzielną grupę (N).

Niejako dodatkowo, gdyż nie stanowiło to bezpośrednio przedmiotu projektu badawczego, badano zawartość substancji gamma promieniotwórczych oraz radiochemicznie oznaczano aktywność Th. Wyniki oznaczeń alfa-spektrometrycznych opublikowano w pracy [Mietelski i inni, 2000], a oznaczeń ⁹⁰Sr w pracy [Mietelski i inni, 2001a]. Projekt podsumowano publikując m.in. wyniki analiz gamma-spektrometrycznych w kolejnym, trzecim artykule [Mietelski i inni, 2001b].



Rys. 57. Lokalizacje miejsc upolowania zwierząt: A- Augustów, B- Białystok, L- Łomża i N - Niepołomice, linie pomiędzy nimi oznaczają podział pomiędzy regionami A, B, L.

Tabela. 35 Dane o próbkach kości zwierzęcych (lokalizacje przedstawił na rys. 57).
regiony: A – Augustów, B – Białystok, L – Łomża, N – Niepołomice.

Kod próbki	Gatunek	Lokalizacja (najbliższa miejscowość/sioło)	Region	Sezon
2	Jeleń, samiec	Gródek	B	1997/8
16	Jeleń, samiec	Wasilków	B	1997/8
17	Jeleń, samica	Supraśl	B	1997/8
18	Jeleń	Supraśl	B	1997/8
19	Jeleń, młody	Supraśl	B	1997/8
20	Jeleń, samica	Supraśl	B	1997/8
21	Jeleń	Knyszyn	B	1997/8
22	Jeleń	Czarna Białostocka	B	1997/8
23	Jeleń	Supraśl	B	1997/8
24	Jeleń, samiec	Czarna Białostocka	B	1997/8
25	Jeleń	Supraśl	B	1997/8
26	Jeleń	Płaska	A	1997/8
27	Jeleń	Czarna Białostocka	B	1997/8
37	Jeleń	Płaska	A	1997/8
41	Jeleń	*	N	1999
29	Dzik	Płaska	A	1997/8
30	Dzik	Tykocin	L	1997/8
33	Dzik	Płaska	A	1997/8
34	Dzik, stara samica	Mielnik	B	1998
35	Dzik	Płaska	A	1997/8
38	Dzik	Płaska	A	1997
40	Dzik, młoda samica	Rubcewo	A	1999
42	Dzik	*	N	1999
1	Łoś, młody	Gródek	B	1997/8
28	Łoś, młody	Trzcianne	L	1997/8
32	Łoś, młody	Gródek	B	1997/8
3	Sarna	Tykocin	L	1997/8
4	Sarna	Radziłów	L	1997/8
5	Sarna	Dąbrowa Białostocka	A	1997/8
6	Sarna	Grabowo Guty	L	1997/8
7	Sarna	Choroszcz	B	1997/8
8	Sarna	Piątnica	L	1997/8
9	Sarna	Gródek	B	1997/8
10	Sarna	Rutki	L	1997/8
11	Sarna	Gródek	B	1997/8
12	Sarna	Zabłudów	B	1997/8
13	Sarna	Mały Płock	L	1997/8
14	Sarna	Łapy	B	1997/8
15	Sarna	Kolno	L	1997/8
31	Sarna	Wąsocz	L	1997/8
39	Sarna	Ciemianka	L	1997/8
43	Sarna	*	N	1999

* - dokładna lokalizacja na terenie Puszczy Niepołomickiej nieznana.

Oczyszczone z tkanek miękkich próbki suszono, mielono, następnie mierzono w nich zawartość substancji gamma promieniotwórczych za pomocą niskotłowego spektrometru promieniowania gamma. Większość tych prac przeprowadzono w Zakładzie Biofizyki AM w Białymstoku, pozostałe w IFJ. Niektóre pomiary wykonane w Białymstoku powtórzono w Krakowie dla weryfikacji wzajemnej interkalibracji. Wyznaczono stężenia ^{137}Cs , naturalnych izotopów

promieniotwórczych jak: ^{228}Ra (^{228}Ac), ^{226}Ra , ^{40}K oraz kosmogenicznego ^{22}Na . Interpretacja linii widmowej 1275 keV, wykorzystywanej do oznaczenia tego ostatniego izotopu, początkowo budziła pewne wątpliwości (czy nie jest to linia pochodząca od ^{154}Eu), jednak przeprowadzony później test (opisany w jednym z następnych akapitów poniżej) je wyjaśnił.

W IFJ wykonano analizy radiochemiczne. Próbki były spopielone w piecu muflowym w temperaturze 600 °C przez 20 h każda. Od 30 do 100 g popiołu (w zależności od ilości dostępnego materiału) pobierano dla analiz radiochemicznych przeprowadzanych w celu oznaczenia izotopów plutonu, ameryku, kiuru i europu. Próbki, z dodanymi znacznikami izotopowymi, rozpuszczano i prowadzono w nich wydzielenie Pu, Th, Am+Cm i ziem rzadkich (opis procedur w Aneksie 2). Pomiar alfa spektrometryczny wykonano na spektrometrze promieniowania alfa Silena AlphaQuattro z detektorami Canberra PIPS. Typowy czas pomiaru wynosił jeden tydzień.

W celu wyjaśnienia wątpliwości dotyczących interpretacji linii 1275 keV, po pomiarach alfa-spektrometrycznych przeprowadzono następujący test. Dla wykrycia ewentualnych śladów izotopów gamma promieniotwórczych pierwiastków ziem rzadkich (głównie izotopów europu: ^{155}Eu i ^{154}Eu widocznych czasem w próbkach ściółek leśnych oraz w „gorących cząstkach”) zebrane wszystkie źródła przygotowane z frakcji ziem rzadkich i ameryku zmierzono łącznie (jako jedną próbkę) wykorzystując niskotłowy spektrometr promieniowania gamma z aktywną osłoną (detektor E). Brak widocznych linii widmowych izotopów europu wykluczył możliwość obecności europu w kościach na mierzalnych poziomach, co ostatecznie potwierdziło hipotetyczną wcześniej interpretację linii gamma 1275 keV jako pochodzącą w całości od ^{22}Na . Granica oznaczalności dla wykrycia śladów ^{154}Eu w teście wynosił 14 mBq/kg (początkowa łączna masa próbek wynosiła 1.715 kg). ^{22}Na znajduje się w powietrzu na poziomie 0.3 $\mu\text{Bq}/\text{m}^3$ [UNSCEAR, 1982] oraz w wodzie deszczowej na poziomie 0.3 mBq/l [Eisenbud, 1987] skąd przenika do roślin a w końcu do kości zwierząt.

Otrzymane parametry statystyczne charakteryzujące zmierzono w próbkach rozkłady aktywności emiterów promieniowania gamma w próbkach kości zestawiono w tabeli 36. Zwraca uwagę różnica w poziomie ^{228}Ra pomiędzy jeleniowatymi i dzikami wynikająca najprawdopodobniej z różnic w podaży ^{228}Ra w pożywieniu. Dla ^{40}K nie stwierdzono różnic międzygatunkowych. Nie stwierdzono obecności izotopów charakterystycznych dla „gorących cząstek”. Nie można wykluczyć, że obecność śladów ^{137}Cs może być kontaminacją z miękkich tkanek. Najwyższe aktywności ^{137}Cs stwierdzono dla dzików.

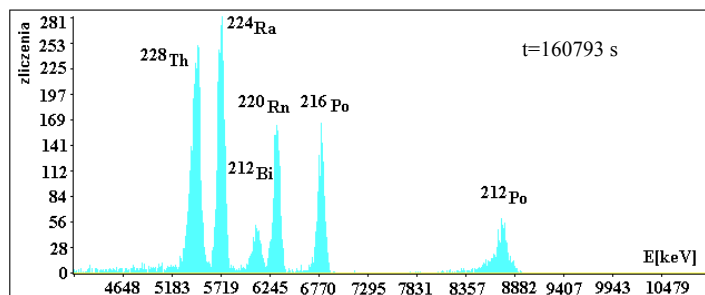
Tabela 36. Zestawienie parametrów statystycznych: średnia arytmetyczna (mediana) \pm odchylenie standardowe charakteryzujące zawartość radioizotopów gamma promieniotwórczych zmierzonych w próbkach kości zwierzęcych z północno-wschodniej Polski (Bq/kg s.m.).

	Jeleń N=14	Sarna N=15	Łoś N=3	Dzik N=5
^{226}Ra	5.7(5.8) \pm 1.9	6.3(6.2) \pm 3.8	3.9(5.0) \pm 3.4	2.8(2.3) \pm 3.0
^{228}Ra	7.1(6.9) \pm 3.4	5.5(5.3) \pm 2.6	5.6(7.0) \pm 5.1	0.9(1.2) \pm 0.54
^{40}K	22.1(20.7) \pm 8.8	24.3(22.5) \pm 10.0	17.6(26.2) \pm 15.2	29.7(25.2) \pm 8.6
^{137}Cs	1.9(1.8) \pm 0.9	4.5(3.4) \pm 3.8	3.1(2.8) \pm 2.0	5.7(7.1) \pm 3.4
^{22}Na	0.36(0.35) \pm 0.20	0.37(0.36) \pm 0.34	0.19(0) \pm 0.33	0.53(0.58) \pm 0.52

Wyniki oznaczeń zawartości wybranych pierwiastków alfa promieniotwórczych w próbkach przedstawiono w tabeli 37. Wyniki dla toru są obliczone przy założeniu jego stuprocentowego odzysku, rzeczywiste stężenia są większe od zaprezentowanych. Przedstawione aktywności ^{228}Th uwzględniają natomiast niewielką aktywności ^{228}Th dodawaną wraz ze znacznikiem ^{236}Pu . Na rysunku 58 przedstawiono typowe widmo promieniowania alfa frakcji torowej wydzielonej z kości. Przy znikomej aktywności ^{232}Th i ^{230}Th widoczne są wyraźne linie widmowe ^{228}Th i pochodnych jego rozpadu (^{224}Ra , ^{220}Rn , ^{216}Po , ^{212}Bi , ^{212}Po). Z porównania odpowiednich danych liczbowych prezentowanych w tabeli 37 widać, że różnice zawartości ^{228}Th i ^{232}Th sięgają dwóch rzędów wielkości dla jeleniowatych i znacznie mniej dla dzików. Średnie stężenia ^{228}Th dla poszczególnych gatunków wynosiły: dla jeleni 4.46 Bq/kg, dla łosi 3.66 Bq/kg, dla saren 2.27 Bq/kg, podczas gdy dla dzików tylko 0.267 Bq/kg. Brak równowagi promieniotwórczej w szeregu torowym (pomiędzy ^{228}Th i

^{232}Th) jest bardzo interesujące. Wydają się one odzwierciedlać różnice w poziomach aktywności ^{228}Ra w diecie zwierząt. ^{228}Ra znajduje się w szeregu torowym przed ^{228}Th , (... $^{228}\text{Ra} \rightarrow ^{228}\text{Ac} \rightarrow ^{228}\text{Th}$...). Rad jest znacznie bardziej mobilny od Th i tym samym łatwiej przyswajany przez rośliny stanowiące główną część diety jeleniowatych. Podobne do wyznaczonych obecnie zawartości ^{228}Th stwierdzono ostatnio dla ^{212}Pb w kościach drobiu [Chibowski i Gładysz, 1999].

W badanych próbkach kości zwierzęcych nie stwierdzono zależności pomiędzy aktywnościami poszczególnych radionuklidów za wyjątkiem dosyć oczywistej korelacji pomiędzy zawartością ^{228}Ra a pochodzącym z jego rozpadu ^{228}Th (kwadrat współczynnika korelacji Pearsona $r^2=0.46$, poziom istotności $p<0.0001$).



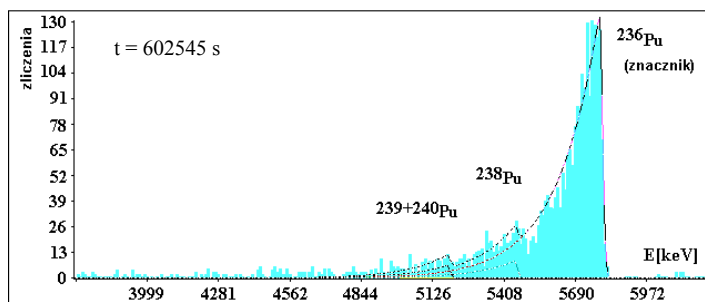
Rys. 58. Widmo cząstek alfa frakcji Th wydzielonej z kości zwierzęcych (połączone próbki 31+15+6).

Wyniki dla $^{239+240}\text{Pu}$ przedstawiono w piątej kolumnie tabeli 37. Średni odzysk Pu wynosił 91%. Zawartość ^{238}Pu była zawsze poniżej granicy oznaczalności.

Wydaje się, że należy w tym miejscu uczynić dygresję metodologiczną. Przy badaniu tak niskich aktywności jak w przypadku poziomów Pu w kościach zwierząt, wyniki silnie zależą od tego, co uważamy za tło spektrometru. Zdecydowano się wykorzystać w tej roli średnie wartości uzyskane z analizy czterech źródeł uzyskanych ze ślepych próbek. Były nimi kilkudziesięciogramowe porcje fosforanu wapnia cz.d.a. z dodanymi znacznikami. Uzyskane częstość zliczeń w tak rozumianym tle dla obszaru linii widmowej $^{239+240}\text{Pu}$ wynosi $(2.3 \pm 0.8) \cdot 10^{-5}$ imp./s, a dla ^{241}Am $(2.5 \pm 0.5) \cdot 10^{-5}$ imp./s. Są to wartości niespełna trzykrotnie większe od biegu własnego pustego spektrometru. Jako granicę oznaczalności przyjęto tu, by liczba zliczeń przewyższała o czynnik $k\sigma$ częstość zliczeń tła spektrometru ($k=2$ lub $k=3$). Przyjmując $\sigma = \sqrt{N} \cdot t^{-1}$, modyfikując wzór 13, minimalna wykrywalna aktywność (MDA) w Bq/kg po odjęciu tła wynosiła :

$$MDA = \frac{k\sqrt{N}}{\Theta_{\alpha} Y m t} \quad \{30\}$$

gdzie: Θ_{α} - wydajność detektora, Y - odzysk, t - czas pomiaru, N - średnia liczba zliczeń dla tła w czasie t , m - masa próbki, $k=2$ lub 3 .



Rys. 59. Widmo cząstek alfa frakcji Pu (próbka 26).

Tabela 37. Wyniki zawartości emiterów promieniowania alfa w spoielonych kościach zwierząt.
W nawiasach lub po symbolu "<" przedstawiono *MDA* dla $k=2$ [Mietelski i inni, 2000].

Kod próbki	Zawartość				
	²³² Th	²³⁰ Th (Bq/kg m.p.±1σ)	²²⁸ Th	²³⁹⁺²⁴⁰ Pu (mBq/kg m.p.±1σ)	²⁴¹ Am
2	<0.004	<0.007	0.12±0.01	1.4±0.6(1.3)	<1
16	<0.005	<0.007	1.40±0.08	<1	<1
17	<0.006	<0.017	0.72±0.06	<2	<2.5 #
18	<0.033	<0.069	7.81±0.44	<2	<1.2
19	<0.010	<0.016	7.16±0.38	<0.8	<1.0
20	<0.009	<0.015	6.66±0.35	<1	*
21	<0.012	<0.015	4.08±0.22	<1.3	*
22	x	x	x	<4	*
24	<0.012	<0.015	5.66±0.29	<3	*
23+25+27	<0.017	<0.028	4.66±0.28	1.2±0.4(0.7)	* #
26	<0.017	<0.022	5.39±0.29	6.2±2.4(1.5)	<1
37	<0.046	<0.084	5.42±0.36	<3	<3 #
29	<0.002	<0.003	<0.01	<2	<1.3 #
30	x	x	x	<2	<3 #
33	0.03±0.01	0.08±0.02	0.37±0.02	<2	<3
34	<0.006	<0.008	<0.03	<3	<3
35	<0.008	<0.012	0.06±0.01	<2	<3
38	0.010±0.004	0.04±0.01	0.33±0.02	<4	<3
1	<0.023	<0.042	3.51±0.23	<3	*
28	<0.024	<0.041	7.16±0.40	<1	*
32	<0.026	<0.034	0.31±0.03	<2	<2.5 #
3+14	<0.023	<0.035	4.30±0.24	<0.7	<1 #
4	<0.023	<0.044	1.78±0.10	<4	<3 #
5	<0.023	<0.036	1.32±0.10	<3	<3
7	<0.020	<0.036	4.28±0.24	<3	<4
8	<0.009	<0.016	0.72±0.04	<4	<3 #
9	<0.040	<0.068	6.45±0.52	<3	<3
10	<0.016	<0.027	1.71±0.10	<3	<3
11	<0.013	<0.020	0.70±0.05	<2	* #
12	<0.006	<0.008	<0.01	<4	* #
13	<0.008	<0.012	<0.01	<3	<2.7 #
15+6+31	<0.009	<0.012	0.94±0.05	0.6±0.2(0.6)	* #
30	<0.011	<0.019	0.31±0.02	<8	<3
39	<0.010	<0.016	0.54±0.03	<2	<2.5 #

x – frakcja torowa utracona w czasie analizy,

*- problem z oddzieleniem od toru

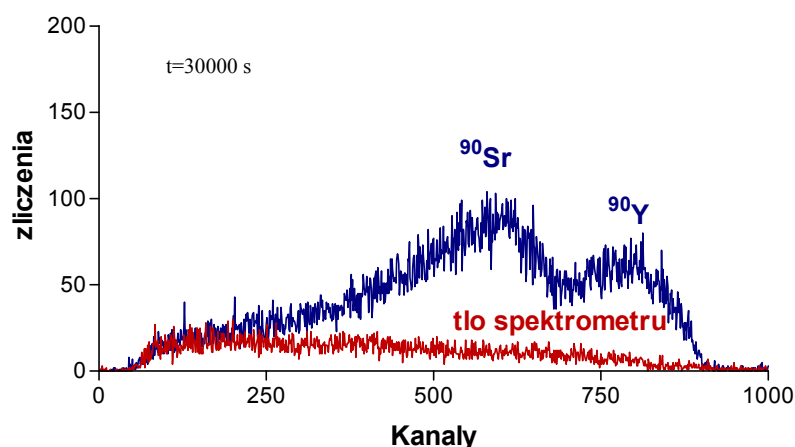
- frakcja Am i ziem rzadkich łącznie.

Wartości *MDA* dla ²³⁹⁺²⁴⁰Pu i dla ²⁴¹Am dla każdej próbki, przy $k=2$ przedstawiono również w tabeli 37. Pojawia się tam ona bądź jako górne oszacowanie aktywności (po symbolu "<") bądź jako liczba w nawiasie dla porównania z ocenioną aktywnością. Dla plutonu tak zdefiniowana wartość *MDA* wynosiła dla stugramowych próbek 0.6 mBq/kg i odpowiednio więcej dla mniejszych.

Najwyższą zawartość ²³⁹⁺²⁴⁰Pu znaleziono w próbce nr. 26 (jeleń pochodzący z Puszczy Augustowskiej, okolice Płaskiej) i wynosiła ona 6.2±2.4 mBq/kg m.p., co przekłada się na 3.4±1.4 mBq/kg s.m. kości. Jest to więcej, niż znaleziono w próbkach kości z żeber reniferów z Finlandii [Paatera i Jaakkola, 1998] pobranych w 1987. Próbka 26 jako jedyna wydawała się spełniać kryterium *MDA* dla $k=3$, choć i w tym przypadku taka interpretacja widma nie była pozbawiona wątpliwości. Widmo ilustrujące te trudności przedstawiono na rysunku 59. Trzy inne próbki wykazywały ewentualne ślady plutonu, jednak wyniki te mogły mieścić się jedynie w dwóch odchyleniach standardowych fluktuacji tła spektrometru alfa (tj. $A > MDA$ dla $k=2$), a więc należy podchodzić do nich z wielką ostrożnością. Dla pozostałych próbek zawartość ²³⁹⁺²⁴⁰Pu była poniżej granicy

oznaczalności. Wszystkie wyniki dla ^{241}Am i $^{243,244}\text{Cm}$ były poniżej granicy oznaczalności detekcji wynoszącego w tym przypadku blisko 2 mBq/kg.

Miejsce śmierci jelenia „26” leży w pobliżu miejsca poboru próbek ściółki leśnej i innych próbek w 1991 r. oznaczonego kodem „120” (Płaska). W wierzchniej warstwie ściółki leśnej stwierdzono wówczas aktywność $^{239+240}\text{Pu}$ równą 3.98 ± 0.33 Bq/kg s.m. a w głębszej 6.88 ± 0.53 Bq/kg s.m. Odpowiadało to depozycji łącznie w obu warstwach równej 26.2 ± 1.8 Bq/m². Jeżeli założymy, że miejsce śmierci jest reprezentatywne dla miejsca życia i pobierania pokarmu przez zwierzę, to współczynnik koncentracji (AC) dla $^{239+240}\text{Pu}$ w kościach wynosi stąd około $2.4 \cdot 10^{-3}$ m²/kg (m.p.).



Rys. 60. Widmo promieniowania beta frakcji zawierającej ^{90}Sr w równowadze z ^{90}Y , wydzielonej ze spopielonych kości zwierzęcych (próbka nr. 1), spektrometr ciekłoscyntylicyjny Wallac 1414-003 Guardian.

Pomiary zawartości ^{90}Sr przeprowadzono oddzielnie, dla próbek o masie (popiołu) wynoszącej od 5g lub 10 g. Wydajność radiochemiczną analizy kontrolowano mierząc poziom stabilnego strontu na początku i końcu analizy z wykorzystaniem atomowej spektrometrii emisyjnej (testowano również metodę PIXE, lecz ta w danych warunkach cechowała się większym błędem pomiarowym). Próbki rozpuszczano w stężonym kwasie azotowym. Podobnie jak w przypadku procedury dla Pu, Am i Cm po rozcieńczeniu współstrącano Sr ze szczawianem wapnia, ale przy pH=6. Różnica w optymalnej wartości pH była powodem, dla którego zrezygnowano z pierwotnie planowanej łącznej procedury radiochemicznej. Stront wydzielano na kolumnie ekstrakcyjnej Sr-Spec. Pomiar aktywności ^{90}Sr wykonywano na spektrometrze z ciekłym scyntylatorem Wallac 1414-003 Guardian. Przykład otrzymanego widma przedstawiono na rys. 60. Wyznaczona metodą emisyjnej spektrofotometrii atomowej zawartość stabilnego Sr w kościach wahała się od 55.4 ± 1.7 ppm (dzik nr. 34) do 91.8 ± 4.5 ppm (jeleń no. 41) przy średniej 71.8 ppm [Mietelski i inni, 2001a]. Odzysk Sr nie był wysoki, wahał się w dużym zakresie: od 5.3 ± 1.5 % do 88.5 ± 1.8 %, przy średniej 26.7 %. Przyczyną niskiego odzysku, jak stwierdzono później, było zastosowanie za małych kolumn ekstrakcyjnych. Warto wyjaśnić, że praca ta była pierwszą pracą nad oznaczaniem ^{90}Sr samodzielnie przeprowadzoną w Laboratorium. Dalsze doskonalenie metody opisano w pracy [Mietelski i Gaca, 2002].

Zawartości ^{90}Sr w kościach (tabela 38) wahały się w szerokim zakresie, od 50 ± 6 Bq/kg (jeleń nr. 17) do 629 ± 13 Bq/kg (jeleń nr. 26). Aktywności ^{90}Sr podano na okres przełomu lat 1997/98, odnoszą się do masy popiołu z kości (stosunek masy popiołu do masy suchej wynosi około 0.6). Najwyższą zawartością ^{90}Sr charakteryzowała się ta sama próbka nr. 26, w której stwierdzono wcześniej najwyższą (obarczoną dyskusowanymi powyżej wątpliwościami) aktywność $^{239+240}\text{Pu}$. Dla tej próbki kości, stosunek aktywności $^{239+240}\text{Pu}/^{90}\text{Sr}$ wynosił $(0.98 \pm 0.38) \cdot 10^{-5}$. Dla porównania, w rdzeniu reaktora czarnobylskiego, a więc i prawdopodobnie w „gorących cząstkach”, był on rzędu 10^{-2} [IAEA-INSAG, 1986]. Oznacza to, że stosunek współczynników przenikania do kości Pu i Sr jest rzędu 10^{-3} .

Tabela 38. Wyniki zawartości ^{90}Sr w popiołach z kości z przedniej nogi dzikich, roślinożernych zwierząt z Polski. (Mietelski i inni, 2001a)

kod	odzysk (%)	^{90}Sr (Bq/kg m.p. $\pm 1\sigma$)	gatunek
2	14.8 \pm 0.6	284 \pm 12	Jeleń
16	13.6 \pm 0.3	155 \pm 9	
17	56.0 \pm 2.0	50 \pm 6	
18	26.5 \pm 0.3	248 \pm 7	
19	29.6 \pm 1.5	318 \pm 16	
20	16.6 \pm 0.7	197 \pm 9	
21	23.8 \pm 0.7	414 \pm 14	
22	9.2 \pm 0.2	473 \pm 14	
23	25.2 \pm 0.4	122 \pm 12	
24	20.0 \pm 0.9	451 \pm 20	
25	13.7 \pm 0.5	331 \pm 12	
26	22.7 \pm 0.4	629 \pm 13	
27	8.3 \pm 0.3	571 \pm 19	
37	35.6 \pm 1.0	330 \pm 10	
41	39.2 \pm 2.3	59 \pm 10	
29	21.5 \pm 0.4	71 \pm 15	Dzik
30	25.6 \pm 1.3	82 \pm 12	
33	37.7 \pm 1.4	63 \pm 10	
34	6.1 \pm 1.0	212 \pm 63	
35	12.6 \pm 0.5	74 \pm 34	
38	5.3 \pm 1.5	571 \pm 169	
40	24.9 \pm 0.8	60 \pm 19	
42	23.9 \pm 1.6	91 \pm 16	
1	88.5 \pm 1.8	139 \pm 3	Łoś
28	72.3 \pm 1.2	307 \pm 5	
32	35.0 \pm 0.4	59 \pm 11	
3	21.5 \pm 1.0	102 \pm 18	Sarna
4	26.2 \pm 1.2	174 \pm 11	
5	24.3 \pm 0.8	298 \pm 12	
6	31.6 \pm 0.6	280 \pm 7	
7	41.0 \pm 0.9	371 \pm 9	
8	17.0 \pm 0.7	101 \pm 19	
9	40.2 \pm 0.9	187 \pm 6	
10	28.2 \pm 0.9	74 \pm 14	
11	25.4 \pm 0.9	160 \pm 11	
12	31.2 \pm 0.6	138 \pm 8	
13	13.7 \pm 0.5	462 \pm 22	
14	14.5 \pm 0.5	447 \pm 20	
15	21.4 \pm 0.8	283 \pm 14	
31	34.4 \pm 0.6	108 \pm 8	
39	21.0 \pm 1.1	89 \pm 21	
43	12.7 \pm 0.2	127 \pm 13	

Jakość prowadzonych analiz kontrolowano wykonując analizy materiałów referencyjnych. W tym przypadku badano materiały IAEA – A-12 (kości zwierzęce) IAEA – Soil-375 (gleba). Stężenie stabilnego Sr w Soil-375 jest zgodne z certyfikowaną wartością, natomiast nie podano certyfikowanej wartości stężenia stabilnego Sr dla materiału A 12. Otrzymane wartości aktywności ^{90}Sr dla obu materiałów mieszczą się w granicach jednego odchylenia standardowego w certyfikowanych granicach. Uzyskane wyniki przedstawiono w Tabeli A-1 w Aneksie 2.

Średnia zawartość ^{90}Sr w popiele ze wszystkich 42 próbek spopielonych kości wynosi 233 Bq/kg a jej rozkład charakteryzuje się dużym rozrzutem, odchylenie standardowe wynosi 163 Bq/kg. Wysokie aktywności obserwowano w próbkach z obszarów A (Augustów) i B (Białystok). Natomiast najniższe w próbkach z Puszczy Niepołomickiej (obszar N), gdzie średnia wynosiła 92 Bq/kg. Przy wyłączeniu obszaru N, dla pozostałych 39 próbek z obszarów A,B,L, średnia wynosiła 244 Bq/kg, a więc była prawie 2.5-krotnie wyższa.

Tabela 39. Statystyczne parametry charakteryzujące zawartość ^{90}Sr w popiołach z kości zwierząt.

Zawartość: średnia (mediana) \pm odchylenie std.; liczba próbek (Bq/kg m.p.) GATUNEK					
REGION	Jeleń	Dzik	Łoś	Sarna	Wszystkie gatunki
A	480(480) \pm 211; 2	67(67) \pm 7; 4	-;0	298(298)-; 1	218(74) \pm 216; 7
B	301(318) \pm 156; 12	212(212)-; 1	99(99) \pm 57; 2	262(187) \pm 138; 5	267(230) \pm 149; 20
L	-; 0	82(82)-; 1	307(307)-; 1	186(108) \pm 132; 9	187(108) \pm 127; 11
N	59(59)-; 1	91(91)-; 1	-/0	127(127)-; 1	92(91) \pm 34; 3
(A+B+L)	327(324) \pm 168; 14	94(73) \pm 58; 6	168(139) \pm 127; 3	219(174) \pm 130; 15	235(192) \pm 157; 38
Łącznie	309(318) \pm 176; 15	93(74) \pm 53; 7	168(139) \pm 127; 3	213(167) \pm 128; 16	224(174) \pm 156; 41

Dla saren i jeleni obserwuje się wyższe niż dla dzika poziomy skażeń ^{90}Sr . Tylko jedna próbka kości dzika (nr. 38) ma stwierdzoną wysoką aktywność ^{90}Sr wynosząca 571 ± 169 Bq/kg p. jednak zaufanie do tego wyniku może budzić bardzo niski odzysk i wynikająca stąd wyjątkowo duży błąd pomiaru. Dlatego w dalszych rozważaniach statystycznych wynik ten nie był uwzględniany. Parametry statystyczne dla rozkładów aktywności ^{90}Sr takie jak średnie arytmetyczne, mediany, odchylenia standardowe otrzymane dla różnych podgrup wydzielonych spośród analizowanych pozostałych 41 próbek przedstawiono w tabeli 39.

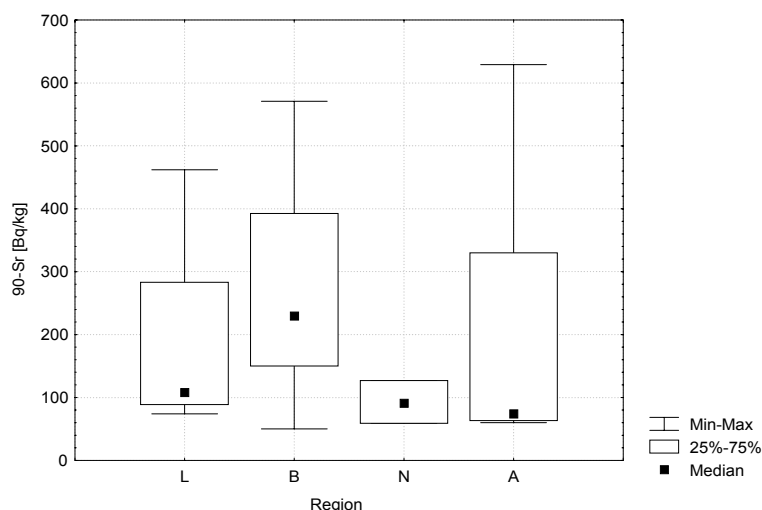
Zastosowana analiza statystyczna służyła weryfikacji dwu hipotez:

1. Próbkę z puszczy Niepołomickiej mają istotnie mniejsze zawartości ^{90}Sr od próbek z Polski północno-wschodniej,

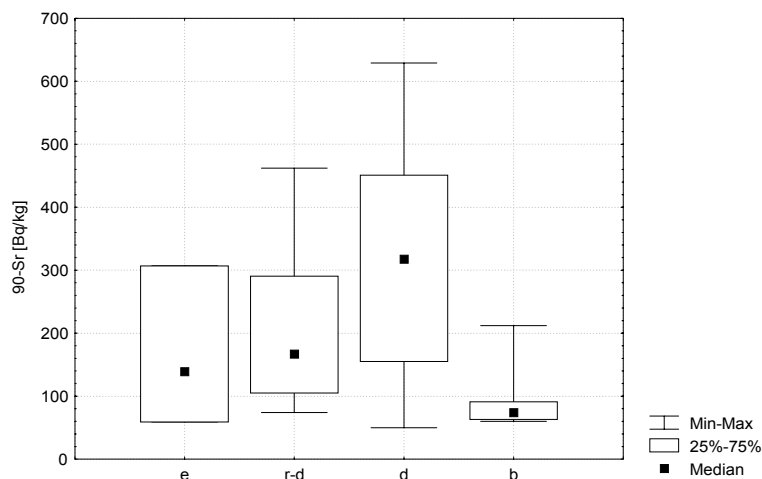
2. Dzikie charakteryzują się niższymi zawartościami ^{90}Sr od jeleniowatych.

Normalność rozkładów badano testami Kołmogorowa-Smirnowa i chi-kwadrat. Stwierdzono rozkłady niegaussowskie. Zastosowano więc test Kruskala-Wallisa dla oceny statystycznej istotności różnic rozkładów. Pomimo widocznych (rys. 61) różnic wartości median czy średnich różnica nie jest istotna statystycznie. Powodem jest zbyt mała liczebność próbek z obszaru N.

Hipoteza druga znajduje potwierdzenie w zastosowanej analizie statystycznej (rys. 62). Jak już wspomniano podobną różnicę obserwowano również w pomiarach Th, gdzie stwierdzono o rząd wielkości inne stężenia ^{228}Th (dla dzików niższe) pomiędzy gatunkami. Sugeruje to, że ^{90}Sr podobnie jak ^{228}Ra znajduje się w mniejszych ilościach w diecie dzików niż w diecie jeleniowatych.



Rys. 61. Rozkład statystyczny zawartości ^{90}Sr w popiołach kości zwierzęcych dla wszystkich gatunków zwierząt łącznie, ale z rozdziałem na regiony L – Łomża, B – Białystok, A – Puszcza Augustowska, N – Puszcza Niepołomska (wyłączona próbka 38). Nie stwierdzono statystycznie istotnych różnic (z racji niskiej liczby próbek z Niepołomic).



Rys. 62. Rozkład statystyczny zawartości ^{90}Sr w popiołach kości zwierzęcych dla wszystkich regionów łącznie, ale z rozdziałem na gatunki (wyłączona próbka 38): (e) - łoś, (r-d) – sarna, (d) – jelen i (b) dzik. Istotna jest statystycznie różnica pomiędzy dzikami a pozostałymi zwierzętami.

Otrzymane wyniki dla kości zwierzęcych można porównać z wynikami dla ludzkich tkanek kostnych. Przykładowo, w Grecji zawartość ^{90}Sr w zębach wahała się od 10 mBq/g Ca do 60 mBq/g Ca a w kościach od 16 mBq/g Ca do 31 mBq/g Ca [Stamoulis i inni, 1999]. Wapń stanowi około 1/7 masy kości, a więc najwyższa z podanych zawartości odpowiada 10 Bq/kg s.m. czyli około 15 Bq/kg popiołu z kości. Obserwowane dla zwierząt z Polski północno-wschodniej aktywności były w średniej ponad 15-krotnie wyższe.

W ostatnich latach nie publikowano wielu wyników aktywności ^{90}Sr w kościach dzikich zwierzęcych roślinożernych (nie licząc pracy [Strandberg i Strandgaard, 1995]). Więcej wyników podawano dla ^{90}Sr w porożu [Tiller i Poston, 2000; Schönhofer i inni, 1994; Strandberg i Strandgaard, 1995]. Poziom ^{90}Sr w kościach i porożu niekoniecznie jest identyczny, jednak dla długiego, wieloletniego okresu po wystąpieniu opadu promieniotwórczego staje się on zbliżony [Strandberg i Strandgaard, 1995].

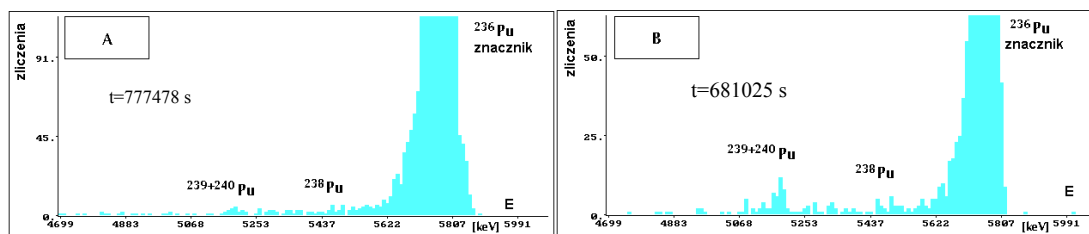
W okresie zimy samce jeleni i łośi nie mają poroża, a samce sarny zaczynają je formować. W pracy [Strandberg i Strandgaard, 1995] sugeruje się, że proces formowania poroża nie wpływa na poziom strontu w kościach, gdyż w jego formowaniu wykorzystywane są mikroelementy pozyskiwane

na bieżąco z diety a nie translokowane z organizmu. Zauważono ujemną korelację pomiędzy [Tiller i Poston, 2000] zawartością ^{90}Sr w porożu a jego wiekiem. W naszym przypadku za mało było danych na temat wieku zwierząt by próbować uchwycić jakąś zależność.

W Danii, w latach 1989-92 zaobserwowano [Strandberg i Strandgaard, 1995] podobne stężenia ^{90}Sr w popiele z kości zwierzęcych jak obecnie w próbkach z obszaru N (wartość liczbową nie jest podana, dane te można tylko odczytać z przedstawionego w cytowanej pracy rysunku). Stężenie ^{90}Sr wynosi od 60 Bq/kg m.p. do 140 Bq/kg m.p. (dla saren). Podana tam wartość współczynnika transferu ^{90}Sr z podłoża do popiołu z poroża sarny wynosi 0.06 (m^2/kg popiołu). Aktywność powierzchniowa odnosi się do skumulowanej depozycji. Jeśli zastosować ten współczynnik transferu dla oceny skumulowanej depozycji dla próbek z Polski północno-wschodniej to przykładowo średnia dla próbek sarny z obszaru B wynosząca 262 Bq/kg m.p. odpowiadałaby skumulowanej depozycji $4.17 \text{ kBq}/\text{m}^2$, a mediana (187 Bq/kg m.p.) prowadzi do $3.12 \text{ kBq}/\text{m}^2$. Około $1.5 \text{ kBq}/\text{m}^2$ to pozostałość opadu globalnego po upływie jednego okresu połowicznego zaniku, więc od $1.5 \text{ kBq}/\text{m}^2$ do $2.5 \text{ kBq}/\text{m}^2$ może stanowić pozostałość depozycji ^{90}Sr z Czarnobyla obecna w środowisku pod koniec lat dziewięćdziesiątych, co daje od $2.2 \text{ kBq}/\text{m}^2$ do $3.5 \text{ kBq}/\text{m}^2$ jako opad w kwietniu-maju 1986. Jest to wartość większa, choć ciągle zbliżona do otrzymanej z badań liści borówki [Mietelski i Vajda, 1997] oceny wynoszącej $2 \text{ kBq}/\text{m}^2$, choć w tym ostatnim przypadku była to ocena wartości maksymalnej a nie średniej.

Reasumując pomiary ^{90}Sr w kościach zwierząt należy podkreślić, że we wszystkich analizowanych próbkach stwierdzono jego obecność, przy czym próbki z Puszczy Niepołomickiej i niektóre próbki z północno-wschodniej Polski wykazywały poziom aktywności porównywalny z aktualnymi wynikami europejskimi, jednak inne - z północno-wschodniej Polski - wykazywały wyższe koncentracje ^{90}Sr . Wskazuje to na obecność w środowisku biodostępnego już ^{90}Sr pochodzącego z opadu „gorących cząstek”.

Otrzymane wyniki zawartości w kościach pierwiastków mających tendencję do kumulowania się w kościach sugerują, że pluton, ameryk i kiur nie przenikają efektywnie poprzez łańcuch pokarmowy dzikich roślinożernych zwierząt do ich kości. To samo dotyczy izotopów europu, których nie stwierdzono w próbkach kości. W przypadku ^{90}Sr jest odwrotnie, wydaje się że został częściowo lub całkowicie wymyty z pierwotnej matrycy „gorących cząstek” i jest biodostępny.



Rys. 63. Fragmenty widm promieniowania alfa Pu (A) ślepa próbka z dodanym znacznikiem ^{236}Pu ; (B) śledziona dzika z dodaną taką samą aktywnością znacznika. Linie widmowe znacznika przedstawiono w $1/4$ ich amplitudy (aktywność znacznika 10 mBq).

Oprócz kości zbadano zawartość Pu w próbce śledziona dzika z południowej części Puszczy Augustowskiej. Masa próbki wynosiła 320 g. Dzik został zastrzelony w okolicach sióła Rubcewo w 2000 r. Stwierdzono (rys. 63) aktywność $^{239+240}\text{Pu}$ równą $1.8 \pm 0.6 \text{ mBq}/\text{kg}$ ś.m., natomiast aktywność ^{238}Pu była poniżej granicy oznaczalności wynoszącej $0.9 \text{ mBq}/\text{kg}$ ś.m. Ten wynik sugeruje, że śledziona może być lepszym materiałem od kości dla przyszłych badań zawartości Pu w organizmach zwierzęcych. Wiadomo, że najlepszym materiałem byłaby wątroba zwierzęcia, w której jak już wspomniano gromadzi się najprawdopodobniej nawet 70% całego plutonu obecnego w ciele (jeśli rozszerzyć wyniki otrzymane dla ludzi na zwierzęta). Wątroba jest jednak cenionym delikatesem, a nie odpadem jak śledziona czy kości, i zazwyczaj jest konsumowana przez myśliwego.

III.3.2. Ssaki owadożerne i gryzonie

W roku 2002 zbadano zawartość Pu i Am kościach czaszek małych ssaków: gryzoni (*Microtus arvalis*- polnik czyli nornik zwyczajny, *Apodemus agrarius* – mysz polna) i owadożernych (*Sorex araneus*- ryjówka aksamitna, *Sorex minutus* – ryjówka malutka, *Crocidura leucodon* – zębielek białawy), wyodrębnionych z wypluwek sowych zbieranych na terenie Zamojszczyzny.

Tabela 40 . Dane o próbkach kości czaszek małych ssaków wydzielonych z wypluwek sowych z okolic Zamościa.

Kod	najbliższa wioska	gatunek ssaka	gatunek sowy	sucha mas [g]	rok
S 1	Rzeplin	<i>polnik</i>	<i>puszczyk</i>	103.2	1995
S 7	Poturzyn	<i>polnik</i>	<i>puszczyk</i>	100.1	1996
S 10	Rzeplin	<i>polnik</i>	<i>puszczyk</i>	40.2	2001
S 19	Plebanka	<i>polnik</i>	<i>puszczyk</i>	26.4	2001
S 2	Łabunie	<i>polnik</i>	<i>płomykówka</i>	154.4	1995
S 3	Nowosiółki	<i>polnik</i>	<i>płomykówka</i>	43.7	1995
S 4	Uchanie	<i>polnik</i>	<i>płomykówka</i>	63.5	1996
S 5	Tarnawatka	<i>polnik</i>	<i>płomykówka</i>	96.9	1996
S 6	Majdan	<i>polnik</i>	<i>płomykówka</i>	50.4	1999
S 8	Szczepiatyn	<i>polnik</i>	<i>płomykówka</i>	26.0	2000
S 9	Magdalenka	<i>polnik</i>	<i>płomykówka</i>	61.0	2000
S 11	Wierzbica	<i>polnik</i>	<i>płomykówka</i>	17.9	2000/2001
S 21	Machnów Nowy	<i>polnik</i>	<i>płomykówka</i>	18.1	2001
S 17	Rzeplin	<i>mysz polna</i>	<i>puszczyk</i>	7.2	2001
S 27	Magdalenka	<i>mysz polna</i>	<i>płomykówka</i>	7.3	2000
S 16	Rzeplin	<i>ryjówka aksamitna</i>	<i>puszczyk</i>	20.6	1995
S 12	Magdalenka	<i>ryjówka aksamitna</i>	<i>płomykówka</i>	6.9	2000
S 14	Uchanie	<i>ryjówka aksamitna</i>	<i>płomykówka</i>	27.0	1996
S 15	Tarnawatka	<i>ryjówka aksamitna</i>	<i>płomykówka</i>	28.9	1996
S 18	Łabunie	<i>ryjówka aksamitna</i>	<i>płomykówka</i>	101.4	1995
S 20	Kornie	<i>ryjówka aksamitna</i>	<i>płomykówka</i>	24.8	2000/2001
S 22	Kościeszyn	<i>ryjówka aksamitna</i>	<i>płomykówka</i>	3.1	2000
S 23	Wierzbica	<i>ryjówka aksamitna</i>	<i>płomykówka</i>	11.8	2000/2001
S 24	Machnów Nowy	<i>ryjówka aksamitna</i>	<i>płomykówka</i>	10.5	2001
S 28	Plebanka	<i>ryjówka aksamitna</i>	<i>płomykówka</i>	7.2	2000
S 25	Kornie	<i>ryjówka malutka</i>	<i>płomykówka</i>	2.1	2000/2001
S 26	Wierzbica	<i>ryjówka malutka</i>	<i>płomykówka</i>	1.0	2000/2001
S 13	Łabunie	<i>zębielek białawyn</i>	<i>płomykówka</i>	39.8	1995

Próbki pozyskano z Katedry Ekologii Zwierząt UMCS z Lublina. Czaszki były oczyszczone z resztek sierści i pogrupowane zgodnie ze swoją przynależnością gatunkową, rejonem geograficznym zbioru oraz gatunkiem sowy, która upolowała dane zwierzę. Wypluwki przypisane były socom należącym do gatunków: płomykówka (*Tyto alba*) i puszczyk (*Strix aluco*). Kość czaszki małego ssaka, choć przebywa przez jakiś czas w żołądku sowy, jest trawiona w nieistotnym stopniu. Dane o próbkach zestawiono w Tabeli 40.

Wykonano pomiary gamma spektrometryczne, oraz analizy radiochemiczne m.in. w celu oznaczeń Pu i Am. Analizy radiochemiczne przeprowadzono dla próbek zgrupowanych w 14 zestawów, tak by próbki zawsze były stosunkowo duże. Wyjątek stanowił. zestaw czaszek ryjówki malutkiej, gatunku bardzo rzadkiego. Pozostałe zestawy miały względnie duże masy; średnia masa (\pm odchylenie std.) spopielenych próbek dla owadożernych wynosiła 40.6 \pm 26.6 g, a dla gryzoni 71.5 \pm 28.4 g. Oznacza to, że pojedyncza próbka lub zestaw zawierał setki czaszek.

Zastosowano standardową procedurę radiochemiczną dla kości opisaną w Aneksie 2, z tym że dla ^{241}Am zastosowano ^{148}Gd jako znacznik i w związku z tym nie oddzielano frakcji ameryku od frakcji ziem rzadkich.

Z punktu widzenia niniejszej pracy najbardziej interesujące były wyniki uzyskane dla aktywności izotopów Pu i Am [Mietelski i inni, 2003]. Aktywności ^{137}Cs , ^{40}K były zbliżone do tych znalezionych dla kości dużych, roślinożernych zwierząt, a wyniki ^{90}Sr były nawet niższe [Gaca i inni, 2003].

Tabela 41. Wyniki zawartości ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$ i ^{241}Am w spopielonych (600°C) czaszkach małych ssaków pozyskanych z sowich wypluwek.

kod i łączenie próbek	spopielona masa [g]	$^{239+240}\text{Pu}$	^{238}Pu	^{241}Am
(mBq/kg m.p. $\pm 1\sigma$)				
S1	71.6	6.0 ± 2.4	< 0.4	ND
S2	110.4	ND	ND	ND
S3+S4	75.2	5.1 ± 1.3	$0 < 4.8$	6 ± 2
S7	70.3	10.4 ± 1.3	$0 < 0.4$	13 ± 10
S5	66.4	97.5 ± 7.7	19.6 ± 3.2	22 ± 4
S6+S9	79.0	1.8 ± 0.4	0.8 ± 0.5	< 4
S8+S10+S21+ +S19+S11	89.6	2.4 ± 0.6	< 1.5	< 1.2
S27+S17	10.2	0.5 ± 0.2	< 4	< 41
S18	71.8	15.3 ± 1.8	1.4 ± 0.4	15 ± 4
S16+S14+S15	53.6	16.7 ± 2.0	< 1.5	16 ± 4
S12+S20+S22+ +S23+S24+S28	57.9	3.2 ± 0.5	< 0.8	7 ± 2
S25+S26	2.4	< 2.4	< 11	< 121
S13	28.0	13 ± 2	4.9 ± 1.0	< 2.5

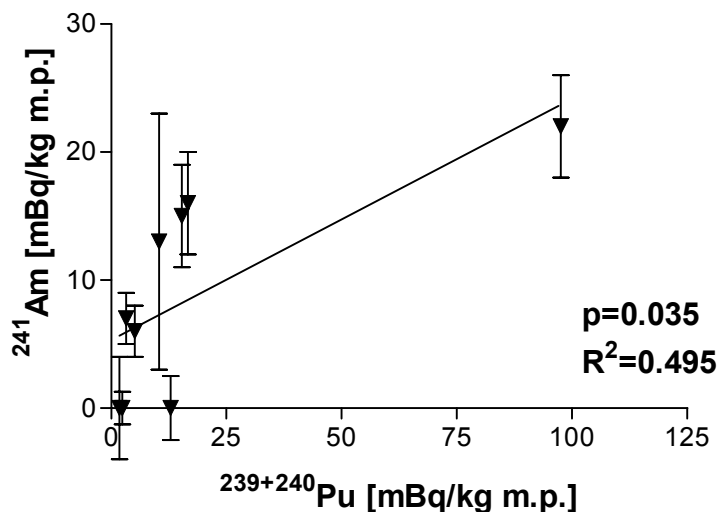
ND – utracono próbkę.

Uzyskane wyniki zawartości radionuklidów plutonu i ameryku zestawiono w tabeli 41, a wynikające z nich wybrane parametry statystyczne, charakteryzujące je, w tabeli 42. Aktywności $^{239+240}\text{Pu}$ i ^{241}Am były ze sobą skorelowane, z $R^2=0.494$ przy poziomie istotności $p=0.035$ (rys. 64)

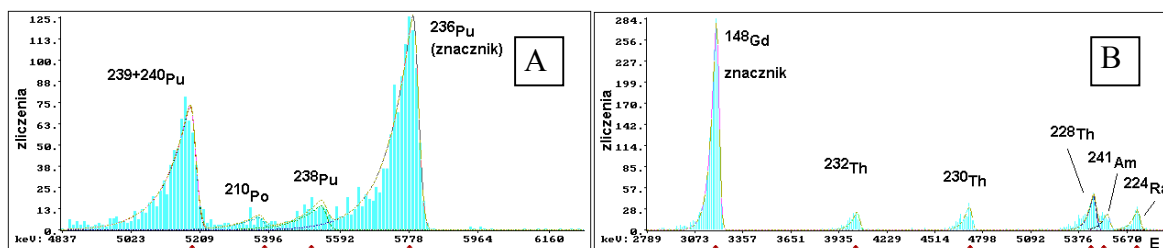
Najwyższą zawartość $^{239+240}\text{Pu}$, ^{238}Pu i ^{241}Am znaleziono dla próbki polnika (*Microtus arvalis*) z miejscowości Tarnawatka (kod S5, tabela 41). Udział składowej czarnobylskiej $^{239+240}\text{Pu}$ dla tej próbki wynosi około 35%. Na rysunku 65 przedstawiono uzyskane widma cząstek alfa dla frakcji Pu i Am z czaszek małych ssaków.

Tabela 42. Wybrane parametry statystyczne charakteryzujące aktywności Pu i Am w spopielonych czaszkach małych ssaków.

Rząd organizmów	Parametr	$^{239+240}\text{Pu}$	^{238}Pu	^{241}Am
(mBq/kg m.p.)				
Gryzonie	mediana	5.1	0.0	5.9
	średnia arytmetyczna	17.7	2.9	8.0
	odchylenie std.	35.4	7.4	9.2
	średni błąd poj. pom.	2.0	2.1	4.1
Owadożerne	mediana	12.9	0.0	11.5
	średnia arytmetyczna	9.6	1.3	9.7
	odchylenie std.	7.5	2.1	7.5
	średni błąd poj. pom.	1.3	2.8	3.2



Rys. 64. Wykres korelacyjny aktywności $^{239+240}\text{Pu}$ i ^{241}Am w czaszkach małych ssaków.



Rys. 65. Widma cząstek alfa (A.) plutonu i (B.) frakcji ameryku oraz ziem rzadkich uzyskane dla próbki czaszek polnika (*Microtus arvalis*) wyodrębnionych z wypluwek sowych (próbka S5).

Okolice Tarnawatki to teren o przewadze podmokłych łąk i bagien. Skażenia gleby, ściółek leśnych i osadów rzecznych plutonem w okolicach Lublina zbadane zostały dzięki pracom prowadzonym na UMCS [Komosa, 1999 a]. Najwyższe stwierdzone w tych pracach wartości udziałów czarnobylskiego Pu w warstwach gleby sięgały 35 % całkowitej aktywności Pu, a typowe wynosiły około 15 %. Jest to więc teren o niższych skażeniach plutonem i amerykiem pochodzenia czarnobylskiego niż Polska północno-wschodnia. Znajduje to potwierdzenie w obserwowanych w próbkach stosunkach aktywności ^{238}Pu do $^{239+240}\text{Pu}$.

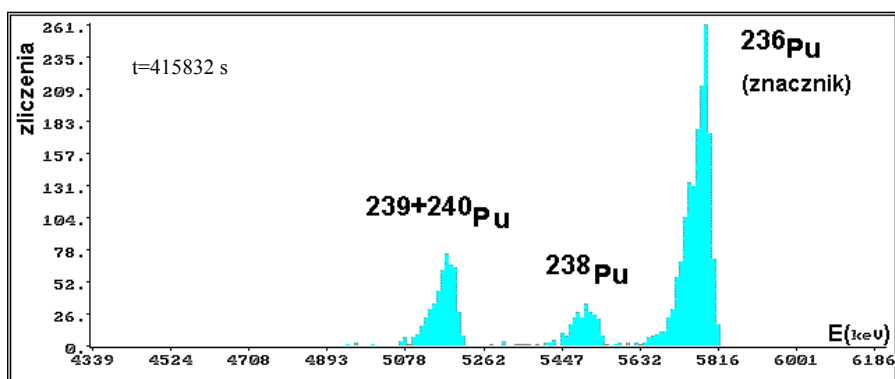
Porównanie tych wyników z analogicznymi rezultatami dla dużych ssaków roślinożernych z Polski północno-wschodniej, przedstawionymi w tabeli 37, pozwala zauważyć, że małe ssaki mają o rząd wielkości wyższe poziomy aktywności Pu i Am w kościach niż duże, nawet porównując z wynikami dla reniferów z Finlandii [Paatera i Jaakkola, 1998]. Stosując nieparametryczny test Mann'a-Whitney'a nie stwierdzono istotnych statystycznie różnic pomiędzy gryzoniami i ssakami owadożernymi. Nawet jeśli wynika to małej liczby prób, to różnice wartości średnich nie są duże.

Wyniki te sugerują, że nie zwyczajnie żywieniowe lecz warunki bytowania decydują o wyższym przyswajaniu plutonu i ameryku przez małe ssaki. Wydaje się, że jedynym wytłumaczeniem jest inhalacja plutonu i ameryku z aerozolami zawartymi w powietrzu wypełniającym podziemne tunele i nory łęgowe tych zwierząt. Jak wspomniano w rozdziale I prawdopodobieństwo wchłonięcia plutonu lub ameryku do organizmu drogą inhalacyjną jest cztery rzędy wielkości wyższe niż gdy drogą tą jest spożywanie substancji zawierających te radionuklidy. Wynik ten jest o tyle interesujący, że droga inhalacyjna zazwyczaj jest zaniedbywana w rozważaniach dotyczących zwierząt.

III.3.3. Alfa emitery w grzybach kapeluszowych

Grzyby często są wykorzystywane jako bioindykatory skażeń radiocezem [Grueter, 1964; Guillitte i inni, 1987,1991; Bakken i Olsen, 1990; Mieltski, 1994; Mieltski i inni, 1994 a]. Akumulacja cezu przez grzyby wydaje się być dobrze poznana i nie stanowiła przedmiotu obecnych badań. Jednakże istniejąca silna zależność gatunkowa zdolności do bioindykacji dla cezu jak i dla ciężkich metali daje nadzieję na możliwość znalezienia gatunków będących bioindykatorami innych radionuklidów. Przykładowo, czubajka kania – *Macrolepiota procera*, przy niskiej zdolności do koncentracji cezu posiada zdolność do akumulacji stabilnego kadmu oraz srebra, w tym jego radioaktywnego izotopu ^{110m}Ag [Gentili, 1991]. Nie można w związku z tym wykluczyć *a priori*, że nie istnieją gatunki grzybów gromadzące ^{90}Sr , plutonu czy ameryk. Wykonane w 1991 r. pomiary potwierdzały możliwość znalezienia śladów Pu w owocnikach grzybów [Mieltski, La Rosa i Ghods, 1993]. W latach 1999-2000 wykonano serię pomiarów stężeń emiterów promieniowania alfa, przede wszystkim izotopów Pu, oraz dla porównania U i Th w próbkach grzybów zebranych w 1991 na terenie Polski. Pomiary przeprowadzono w ramach współpracy polsko – hiszpańsko – ukraińskiej, a wyniki (zawierające również wyniki prac zagranicznych) opublikowano w artykule [Mieltski i inni, 2002]. Dla potrzeb niniejszej pracy najbardziej interesujące są wyniki otrzymane dla próbek z Polski. Badane próbki należały do gatunków: podgrzybek brunatny (*Xerocomus badius*), prawdziwek (*Boletus edulis*), czubajka kania (*Macrolepiota procera*), mleczaj chrząstka (*Lactarius vellereus*) i opieńka miodowa (*Armillariella mellea*). Wykorzystane do pomiarów próbki pochodziły z programu badawczego opisanego np. w pracy [Mieltski, 1994]. Były wcześniej analizowane pod kątem zawartości izotopów gamma-promieniotwórczych i dlatego były już zmielone. Do analiz wybrano próbki o dużych, rzędu 100 g masach, często z kilku próbek owocników grzybów jednego gatunku pochodzących z pobliskich rejonów tworzono łączną, dostatecznie dużą, próbkę. Szczegóły tworzenia zbiorczych próbek opisano w pracy [Mieltski i inni, 2002]. Przed przygotowaniem do pomiaru gamma spektrometrycznego (a więc przed zmieleniem) z zewnątrz wysuszone owocniki były czyste w sensie odpowiadającym czystości spożywczej. Wspomina się tu o tym, gdyż w przypadku badania śladowych aktywności problem ewentualnej kontaminacji powierzchni jest niebanalny. Szczęśliwie dysponowano dużą masą suchych, niezmielonych owocników podgrzybka brunatnego (*Xerocomus badius*) zebranych w 1993 w rejonie Krzyża (Wielkopolska). Próbka ta posłużyła do przeprowadzenia testu na wpływ szczególnie starannego czyszczenia powierzchni owocników na obserwowane poziomy aktywności. Owocniki te myto poprzez szczotkowanie w roztworze detergentu. Do analizy pobrano zarówno umyte owocniki jak i roztwór po myciu, próbki te są tu oznaczone „X-X” oraz „woda z mycia X-X”. Kody pozostałych próbek to kody powierzchni badawczych z pracy (Mieltski, 1994). Próbka podgrzybka z powierzchni 49 podzielona została na dwie połowy (A i B) i oddzielnie wyznaczono dla nich aktywność Pu. Dla oznaczeń Th i U połowy te już połączono.

Wyniki zawartości ^{238}Pu i $^{239+240}\text{Pu}$ w grzybach przedstawiono w tabeli 43. Średnia arytmetyczna odzysku wynosiła 72% z odchyleniem standardowym równym 17%. Najwyższą zawartość wynoszącą dla $^{239+240}\text{Pu}$ 81 ± 5 mBq/kg s.m. i dla ^{238}Pu 31 ± 2 mBq/kg s.m. znaleziono dla próbki podgrzybka (*Xerocomus badius*) z Puszczy Augustowskiej (łączona próbka 120 i 131). Wartość stosunku aktywności $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ wskazuje na około siedemdziesięcioprocentowy udział Pu z Czarnobyla (F) w tej próbce. Inne próbki z tych okolic (np. powierzchnie nr 23, 142, 224) również wykazują duży procentowy udział czarnobylskiego Pu (rys. 66), lecz niższe stężenia, nawet rzędu tylko pojedynczych mBq/kg s.m. Interesujący wynik uzyskano dla borowika z Baraniej Góry (próbka 108), gdzie wyraźnemu sygnałowi od $^{239+240}\text{Pu}$ (aktywność 27.8 ± 3.8 mBq/kg s.m.) towarzyszy niemierzalna aktywność (<0.6 mBq/kg s.m.) ^{238}Pu . Wskazuje to jednoznacznie na opad globalny jako źródło Pu w tej próbce. Pozostałe próbki mają małe, choć mierzalne (przynajmniej dla $^{239+240}\text{Pu}$) aktywności na poziomie pojedynczych mBq/kg s.m. Jest to tym bardziej interesujące, że pojedynczy wynik stężenia $^{239+240}\text{Pu}$ (282 mBq/kg s.m.) w próbce prawdziwka (*Boletus edulis*) z Anglii [Barnett i inni, 1997] przy opadzie globalnym jako źródle Pu. Opad globalny Pu dla Polski i Anglii nie może różnić się tak znacznie, by wyjaśnić różnicę zawartą pomiędzy tymi wynikami. Różnica musi być spowodowana nie znanymi w obecnej chwili czynnikami środowiskowymi wpływającymi na mobilność plutonu.



Rys. 66. Widmo cząstek alfa Pu wydzielonego z próbki podgrzybka bunatnego (*Xerocomus badius*) z powierzchni nr. 142 z Puszczy Augustowskiej.

Tabela 43. Wyniki zawartości Pu w próbkach owocników grzybów z Polski.

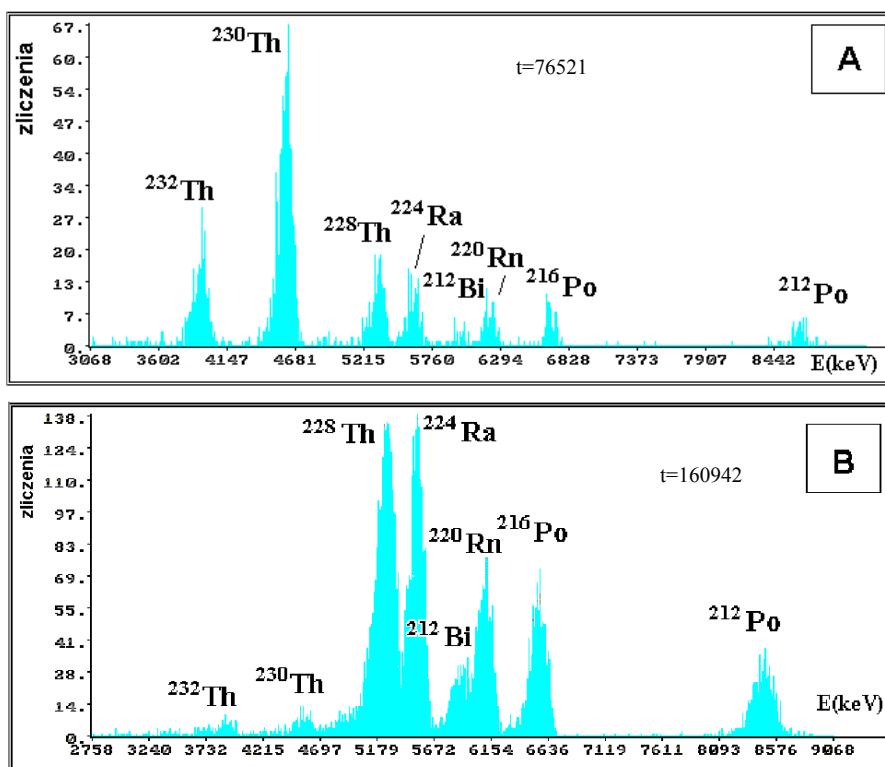
gatunek	kod powierzchni	Sucha masa (g)	odzysk (%)	$^{239+240}\text{Pu}$ (mBq/kg s.m. $\pm 1\sigma$)	^{238}Pu	F (%)
<i>Boletus edulis</i>	108	76.9	39.1 \pm 1.6	27.8 \pm 3.8	<0.6	<30
Prawdziwek	120+131	201.5	70.1 \pm 2.5	3.0 \pm 0.4	1.0 \pm 0.3	58 \pm 19
	182+186	157.8	52.5 \pm 1.6	4.1 \pm 0.5	0.2 \pm 0.3	4 \pm 5
	67+184	225.3	58.1 \pm 1.5	2.1 \pm 0.3	0.2 \pm 0.2	13 \pm 13
	1+140	224.9	70.2 \pm 1.8	3.0 \pm 0.3	0.5 \pm 0.2	26 \pm 11
	52+280	190.8	54.5 \pm 1.7	3.2 \pm 0.4	0.3 \pm 0.2	12 \pm 8
	68+101+192	98.8	85.5 \pm 2.2	2.5 \pm 0.5	0.9 \pm 0.5	64 \pm 38
	5+21+109+273	222.2	56.3 \pm 1.5	4.3 \pm 0.6	0.6 \pm 0.4	21 \pm 14
	73+149+		61.7 \pm 1.9	4.1 \pm 0.5	1.0 \pm 0.2	
	164+243	197.8				41 \pm 10
	275	90.4	80.3 \pm 2.0	2.0 \pm 0.4	0.8 \pm 1.2	\leq 100
<i>Xerocomus badius</i>			69.1 \pm 1.8	5.2 \pm 1.0	0 \pm 1.1	
podgrzybek brun.	23	38.8				<23
	49	73.3	69.5 \pm 1.9	3.1 \pm 0.6	0.1 \pm 0.6	<3
	67+184	143.6	58.1 \pm 1.6	4.6 \pm 0.5	2.4 \pm 0.4	95 \pm 19
	120+131	142.2	83.4 \pm 2.4	81.0 \pm 5.0	31.0 \pm 2.0	68 \pm 6
	142	189.8	81.3 \pm 2.2	16.7 \pm 1.1	7.9 \pm 0.7	85 \pm 9
	161	158.4	85.6 \pm 2.2	1.3 \pm 0.3	0.8 \pm 0.3	113 \pm 50
	224	42.1	89.0 \pm 2.1	2.9 \pm 0.7	1.9 \pm 1.0	120 \pm 70
	X-X	114	96.7 \pm 2.2	1.7 \pm 0.3	0.8 \pm 0.2	85 \pm 26
	Woda z mycia X-X	114	95.2 \pm 2.1	1.2 \pm 0.3	1.2 \pm 0.3	>100
<i>Macrolepiota procera</i>	23	16.8	94.4 \pm 2.1	5.4 \pm 1.7	3.3 \pm 2.5	112 \pm 92
czubajka kania	142	68.3	72.8 \pm 1.9	9.0 \pm 1.1	3.6 \pm 0.8	71 \pm 18
<i>Lactarius</i>	49 (cz. A)	75.1	36.5 \pm 1.4	6.3 \pm 1.1	2.6 \pm 0.7	74 \pm 24
<i>Vellereus</i>	49 (cz. B)	64.5	58.2 \pm 2.4	6.1 \pm 1.1	1.5 \pm 0.7	42 \pm 21
mleczaj chrząstka	161	162.3	40.5 \pm 1.6	4.9 \pm 0.7	0.2 \pm 0.3	2 \pm 3
<i>Armillariella mellea</i>	224	57.5	59.5 \pm 1.7	3.5 \pm 0.8	0.4 \pm 0.7	16 \pm 29
opieńka miod.						

Wyniki dla ^{232}Th (z szeregu torowego) i ^{230}Th (z szeregu uranowego) zestawiono w tabeli 44. Obliczone zawartości mieszają się w zakresie od kilku mBq/kg s.m. do 228 ± 15 mBq/kg s.m. dla ^{232}Th i do 616 ± 24 mBq/kg s.m. dla ^{230}Th . Najwyższe aktywności zaobserwowano dla podgrzybka brunatnego z powierzchni 49 (okolice Warszawy) Ponownie, ze względu na brak zastosowania znacznika Th w pomiarach prezentowane wyniki są dolnym oszacowaniem rzeczywistych aktywności. Uzyskane w równolegle prowadzonych analizach wyniki dla materiałów referencyjnych sugerują, że odzysk jest rzędu 50%. Jeżeli przyjmemy taki odzysk dla wszystkich analizowanych próbek, wówczas prawdziwki (*Boletus edulis*) wykazują niższą aktywność Th od pozostałych gatunków. Nie obciążony problemami związanymi z nieznanym odzyskiem stosunek aktywności $^{230}\text{Th}/^{232}\text{Th}$ waha się od 0.65 ± 0.15 do 2.70 ± 0.20 . Próbkę grzybów reprezentujące różne gatunki ale pochodzące z tych samych lokalizacji mają zbliżoną wartość tego stosunku. Nie podano wyników liczbowych dla aktywności ^{228}Th , gdyż ślady tego izotopu (ok. 5 mBq) dodawano do próbek wraz ze znacznikiem ^{236}Pu (jest to produkt jego rozpadu), a przy nieznanym odzysku nie było możliwe poprawne obliczenie wynikającej stąd poprawki wyznaczonej aktywności.

Tabela 44. Wyniki zawartości izotopów Th i stosunku aktywności $^{230}\text{Th}/^{232}\text{Th}$ zaobserwowane w próbkach grzybów, obliczone przy założeniu pełnego odzysku (szczegóły w tekście).

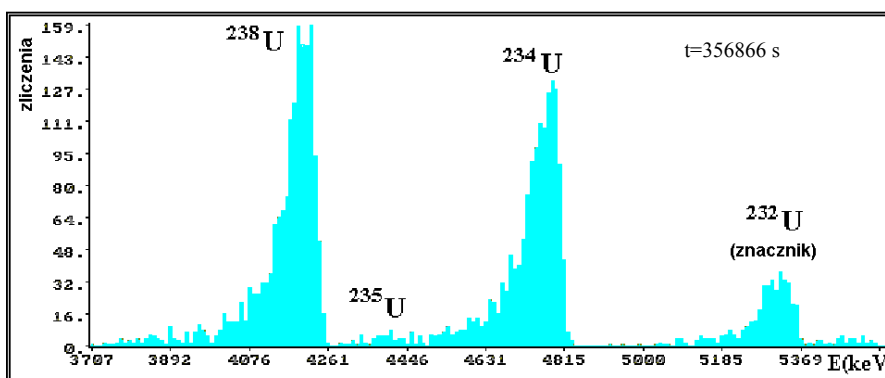
Gatunek	Kody próbek i sposób łączenia	Zawartość		Stos. aktywności $^{230}\text{Th}/^{232}\text{Th}$
		^{232}Th	^{230}Th (mBq/kg s.m. $\pm 1\sigma$)	
<i>B. edulis</i> Prawdziwek	120+131	2.5±0.4	2.5±0.4	1.03±0.25
	1+ 5+ 21+ 52+ 68+73+ 101+108+ +140+149+164+192+243+ +273+280	4.0±0.2	3.9±0.2	0.97±0.07
	275+182+186	4.0±0.5	4.9±0.6	1.21±0.22
<i>X. badius</i> podgrzybek	23	41±7	48±8	1.19±0.29
	49	228±15	616±24	2.70±0.20
	67	5.8±0.6	4.8±0.6	0.83±0.13
	120	8.0±0.7	8.3±0.7	1.04±0.14
	142	1.9±0.3	1.5±0.2	0.78±0.16
	161	3.8±0.5	3.4±0.4	0.91±0.15
	224	31±3	28±2	0.90±0.11
	X-X	3.2±0.5	2.3±0.4	0.74±0.16
	Woda z mycia X-X	6.0±0.7	8.8±0.8	1.47±0.21
<i>M. procera</i>	23	33±5	21±4	0.65±0.15
Cz. kania	142	3.1±0.6	3.0±0.7	0.96±0.30
<i>L. vellereus</i>	49 (A+B)	17±2	26±3	1.51±0.23
Mleczaj ch.	161	13±2	14±2	1.08±0.18
<i>A.mellea</i> Opieńka	224	9.4±1.1	13.6±1.4	1.44±0.22

Choć nie prowadzono oznaczeń radu z otrzymanych widm można wyciągnąć pewne wnioski na temat jego obecności, a właściwie jego nieobecności, w badanych owocnikach grzybów. Porównanie typowego widma cząstek alfa rośliny i owocnika grzyba (rys. 67) ujawnia znamioną różnicę. Próbkę roślinną wykazują silną nierównowagę promieniotwórczą pomiędzy ^{228}Th a ^{232}Th , podobnie jak kości. Natomiast grzyby nie wykazują tego efektu, co wskazuje na brak kumulacji radu w ich owocnikach, gdyż to mobilność ^{228}Ra odpowiada za złamanie tej równowagi. Ze względu na podobieństwo chemiczne radu i strontu wynik ten sugeruje również brak tendencji do gromadzenia ^{90}Sr przez badane gatunki grzybów.



Rys. 67. Porównanie widma cząstek alfa toru dla (rys. A) próbki owocnika podgrzybka brunatnego *Xerocomus badius* (powierzchnia nr. 49) oraz dla (rys. B) liści borówki-czarnej jagody *Vaccinium myrtillus*.

Wyniki zawartości uranu w analizowanych próbkach grzybów przedstawiono w tabeli 45. Nie przedstawiono wyników dla prawdziwków, gdyż prace nad oznaczaniem uranu rozpoczęto, gdy próbki prawdziwka już nie istniały. Odzysk znacznika ^{232}U (dodawanego jako produkt rozpadu ^{236}Pu wraz z nim) wahał się od $16 \pm 2\%$ do $106 \pm 10\%$, ze średnią arytmetyczną 53% i odchyleniem standardowym 27% .



Rys. 68. Widmo cząstek alfa U wydzielonego z próbki podgrzybka (*Xerocomus badius*) z Puszczy Augustowskiej (łączna próbka 120+131).

Zawartości izotopów uranu są wyższe od tych dla Th i Pu. Nie widać wyraźnych różnic międzygatunkowych. Najwyższą aktywność ^{238}U , wynoszącą 240 ± 70 mBq/kg s.m., zaobserwowano dla podgrzybka brunatnego (*Xerocomus badius*) z powierzchni 49 (okolice Warszawy). Stosunek aktywności $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ był zbliżony do jedności dla większości próbek (rys. 68). Jednak dla czubajki kani (*Macrolepiota procera*) i opieńki miodowej (*Armillariella mellea*) wartość tego stosunku była zaskakująco niska, wahała się od 0.46 ± 0.08 do 0.65 ± 0.06 . Choć oba wymienione izotopy uranu należą do szeregu uranowego często w środowisku nie są w stanie równowagi. W próbkach wody zazwyczaj

przeważa aktywność ^{234}U , podczas gdy w minerałach przemywanych tą wodą więcej pozostaje ^{238}U [Asikainen, 1980]. Przyjmuje się, że dzieje się tak, gdyż uszkodzenia radiacyjne struktury krystalicznej ziarna mineralnego wywołane rozpadem alfa ^{238}U ułatwiają wymycie pochodnych jego rozpadu z ziarna [Olguin i inni, 1990]. Niskie wartości stosunku aktywności $^{238}\text{U}/^{234}\text{U}$ sugerują, że w tych przypadkach uran nie dostał się do owocnika jako jon zawarty w roztworze glebowym a raczej jako ziarno mineralne. Przemawiają tym samym za rodzajem mikro zanieczyszczenia powierzchni lub zaokludowaniem ziaren z uranem do owocnika. Nie towarzyszy temu większa aktywność U niż dla innych grzybów. Dalsze badania nad zawartością uranu w grzybach powinny przynieść tu wyjaśnienie. Nie stwierdzono obecności ^{236}U . Mógłby on pochodzić z „gorących cząstek”.

Tabela 45. Wyniki zawartości uranu w próbkach grzybów.

Gatunek	Kod powierzchni	Odzysk (%)	Zawartość		Stos. Aktywn. $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$
			^{238}U	^{234}U (mBq/kg s.m. $\pm 1\sigma$)	
<i>X. badius</i>	23	16 \pm 2	70 \pm 21	62 \pm 13	0.95 \pm 0.22
Podgrzybek	49	51 \pm 5	240 \pm 70	240 \pm 20	9 \pm 5
	67	19 \pm 4	50 \pm 20	60 \pm 10	
	120	41 \pm 5	160 \pm 50	140 \pm 10	6 \pm 4
	142	34 \pm 3	130 \pm 30	89 \pm 7	
	161	106 \pm 10	15 \pm 4	14 \pm 2	
	224	97 \pm 10	70 \pm 20	66 \pm 9	
	X-X	46 \pm 5	22 \pm 6	23 \pm 3	
	Woda z mycia X-X	69 \pm 6	18 \pm 4	17 \pm 2	
<i>L. vellereus</i>	49 (A+B)	79 \pm 7	120 \pm 30	140 \pm 20	1.17 \pm 0.16
Mleczaj ch.	161	40 \pm 3	170 \pm 30	170 \pm 10	10 \pm 5
<i>M. procera</i>	23	42 \pm 5	270 \pm 90	120 \pm 20	0.46 \pm 0.08
<i>Kania</i>	142	50 \pm 5	100 \pm 30	62 \pm 6	0.65 \pm 0.06
<i>A.mellea</i> <i>opieńka</i>	224	45 \pm 5	100 \pm 30	50 \pm 7	0.50 \pm 0.07

Tabela 46. Podstawowe parametry statystyczne dla współczynnika przenikania (TF) Pu do owocników grzybów.

Gatunek	Liczba próbek	Warstwa	TF				
			Średnia	Mediana	Odchyl. std.	Min.	Max
Prawdziwek (<i>Boletus edulis</i>)	4	Pow.	1.91 \cdot 10 ⁻²	8.38 \cdot 10 ⁻³	2.72 \cdot 10 ⁻²	1.00 \cdot 10 ⁻³	5.86 \cdot 10 ⁻²
		Humus	1.86 \cdot 10 ⁻³	1.39 \cdot 10 ⁻³	1.64 \cdot 10 ⁻³	9.77 \cdot 10 ⁻⁴	4.17 \cdot 10 ⁻³
Podgrzybek (<i>Xerocomus badius</i>)	6	Pow.	1.03 \cdot 10 ⁻²	3.18 \cdot 10 ⁻³	1.41 \cdot 10 ⁻³	0.08 \cdot 10 ⁻³	37.8 \cdot 10 ⁻³
		Humus	3.95 \cdot 10 ⁻³	3.19 \cdot 10 ⁻³	4.11 \cdot 10 ⁻³	5.50 \cdot 10 ⁻⁴	1.30 \cdot 10 ⁻²
Mleczaj chrząstka (<i>Lactarius vellereus</i>)	3	Pow.	4.55 \cdot 10 ⁻²	6.16 \cdot 10 ⁻³	2.97 \cdot 10 ⁻²	1.11 \cdot 10 ⁻²	6.36 \cdot 10 ⁻²
		Humus	8.51 \cdot 10 ⁻³	6.47 \cdot 10 ⁻³	3.71 \cdot 10 ⁻³	6.27 \cdot 10 ⁻³	1.28 \cdot 10 ⁻²
Czubajka kania (<i>M. procera</i>)	2	Pow.	2.17 \cdot 10 ⁻³	2.17 \cdot 10 ⁻³	-	1.67 \cdot 10 ⁻³	2.67 \cdot 10 ⁻³
		Humus	1.94 \cdot 10 ⁻³	1.94 \cdot 10 ⁻³	-	1.88 \cdot 10 ⁻³	2.00 \cdot 10 ⁻³
Opieńka miodowa (<i>A. mellea</i>)	1	Pow.	1.03 \cdot 10 ⁻³	-	-	-	-
		Humus	6.6 \cdot 10 ⁻⁴	-	-	-	-

Mając uprzednio wyznaczone stężenia Pu w ściółkach leśnych a obecnie w grzybach można obliczyć współczynnik przenikania TF lub współczynnika koncentracji AC. Obliczone parametry statystyczne dla TF i AC zestawiono w tabelach 46 i 47. O rząd wielkości wyższe wartości TF z warstwy powierzchniowej ściółki względem tych z warstwy humusowej wydają się być artefaktem w

tym sensie, że wywołane są trywialnie przez mniejsze wartości znajdujące się w mianowniku – względnie małe koncentracje Pu w tej warstwie - a nie opisują silniejszego przenikania Pu z warstwy powierzchniowej do grzybni. Dlatego bardziej miarodajnym parametrem opisującym przenikanie Pu do owocnika grzybów wydaje się być AC, gdzie w mianowniku znajduje się aktywność zdeponowana na powierzchni. Dla większości próbek jest on rzędu 10^{-3} m²/kg. Publikowane wartości AC otrzymane dla próbek z najsilniej skażonych terenów w pobliżu reaktora czarnobylskiego [Ageev, 1996] są niższe o rząd a nawet dwa rzędy wielkości. Ta rozbieżność uwidacznia trudności pojawiające się przy opisie przenikania skażeń do organizmów za pomocą współczynnika TF lub AC. W mianowniku wzorów powinna znajdować się aktywność zawarta w warstwie, z której czerpie organizm mikroelementy, a wyodrębnienie tylko tej warstwy nie jest oczywiste.

Table 47. Współczynniki koncentracji (AC) Pu w owocnikach grzybów – podstawowe parametry s tatystyczne

Gatunek	Liczba próbek	AC				
		Średnia	Mediana	Odchyl.Std.	Min.	Max.
Prawdziwek/ <i>Boletus edulis</i>	4	$2.54 \cdot 10^{-4}$	$2.11 \cdot 10^{-4}$	$1.37 \cdot 10^{-4}$	$1.40 \cdot 10^{-4}$	$4.53 \cdot 10^{-4}$
Podgrzybek/ <i>Xerocomus badius</i>	6	$1.39 \cdot 10^{-3}$	$1.05 \cdot 10^{-3}$	$1.41 \cdot 10^{-3}$	$0.08 \cdot 10^{-3}$	$37.8 \cdot 10^{-3}$
Mleczaj ch./ <i>Lactarius vellereus</i>	3	$3.14 \cdot 10^{-3}$	$2.77 \cdot 10^{-3}$	$0.72 \cdot 10^{-3}$	$2.68 \cdot 10^{-3}$	$3.96 \cdot 10^{-3}$
Kania/ <i>Macrolepiota procera</i>	2	$4.43 \cdot 10^{-4}$	$4.43 \cdot 10^{-4}$	-	$3.22 \cdot 10^{-4}$	$5.65 \cdot 10^{-4}$
Opieńka/ <i>Armillariella mellea</i>	1	$9.18 \cdot 10^{-5}$	-	-	-	-

Rozważano trzy mechanizmy przeniknięcia radionuklidów do badanych owocników grzybów:

1. zabrudzenie zewnętrzne ziarnami mineralnymi.
2. nasiąknięcie jonami z roztworu glebowego w okresie wzrostu owocnika w ściółce/glebie.
3. włączanie jonów poprzez grzybnię i relokacja z grzybni do owocnika.

Choć niektóre wyniki dla uranu sugerują pierwszy z powyższych mechanizmów istnieją wyniki przemawiające za pozostałymi dwoma, a mianowicie:

1. Aktywność Pu i U (choć nie Th) próbki X-X podzieliła się praktycznie po połowie pomiędzy roztwór z mycia (czarny - ewidentnie zawierający usunięte fragmenty tkanek owocnika i wymyty barwnik) oraz pozostałą próbkę. Oznacza to, że nawet bardzo intensywne mycie połączone z mechanicznym usuwaniem zewnętrznych powłok owocnika nie usuwa całkowicie obserwowanych aktywności, tym samym co najmniej znacząca część aktywności jest wbudowana w owocnik.
2. Zróżnicowanie podziału aktywności Pu, Th i U pomiędzy roztwór i pozostałość również sugeruje, że przynajmniej częściowo nuklidy te znajdują się w roztworze myjącym, bo zostały wypłukane z owocnika a nie zmyte z jego powierzchni w ziarnach mineralnych, które powinny mieć przynajmniej stały stosunek U/Th.
3. Obie połówki próbki 49 wskazują równe sobie aktywności Pu. Wydaje się mało prawdopodobne, by przypadkowe zabrudzenie zewnętrzne dzieliło się tak równo. Oba te wyniki sugerują, że znacząca część obserwowanych aktywności pochodzi od Pu wbudowanego do wnętrza owocników.

III.3.4. Izotopy z „gorących cząstek” w próbkach roślin naczyniowych

W 1999 r. wykonano wstępne badania zawartości plutonu w kilku próbkach liści borówki czarnej jagody (*Vaccinium myrtillus*) i brusznicy (*Vaccinium vidis-idaea*) pobranych w roku 1991 r. Pomiar te stanowiły próbę uzupełnienia opisanych już wcześniej badań aktywności ^{90}Sr w 16 próbkach liści borówki [Mietelski i Vajda, 1997] oraz badań aktywności ^{137}Cs , ^{134}Cs i ^{40}K w 118 takich próbkach z terenu całej Polski [Mietelski, 1994]. Wyniki nie były dotychczas publikowane. Próbki spopieleno i przeprowadzono analizy radiochemiczne zgodnie ze standardową procedurą opisaną w Aneksie 2. W tabeli 48 zestawiono otrzymane wyniki zawartości izotopów Pu w tym materiale roślinnym. Wykazywały one istnienie mierzalnych aktywności plutonu w roślinach, przy czym próbka z Puszczy Augustowskiej wykazywała bez wątpienia obecność Pu z opadu czarnobylskiego. W bardzo wstępnych badaniach prowadzonych przez autora [Mietelski i inni, 1993] w próbkach roślinnych nie udało się zmierzyć aktywności Pu. Istnienie skończonej, względnie łatwo mierzalnej aktywności Pu w roślinach było już przypuszczane w niniejszej pracy przy okazji dyskusji rozbieżności stosunków izotopowych Pu w opadzie czarnobylskim, analizowanym na podstawie próbek roślinnych lub bezpośrednio (tj. w filtrach powietrza lub opadzie). Chęć zweryfikowania tych wyników była jedną z przesłanek dla zaproponowania, następnie zrealizowanego projektu badawczego KBN 6P04G 07520 dotyczącego poszukiwań izotopów plutonu, ^{90}Sr i ^{241}Am w roślinach i owadach.

Tabela 48. Zawartość izotopów plutonu w próbkach liści borówki czarnej jagody (*Vaccinium myrtillus*) i borówki brusznicy (*Vaccinium vidis-idaea*) z 1991 roku.

Kod próbki	Masa [g]	Odzysk	^{238}Pu (mBq/kg s.m. $\pm 1\sigma$)	$^{239+240}\text{Pu}$ (mBq/kg s.m. $\pm 1\sigma$)	Uwagi
VM-108	90.2	85.7 \pm 2.2	1.3 \pm 0.5	3.5 \pm 0.6	Beskid Żywiecki
VM-67	100.7	90.6 \pm 2.5	1.6 \pm 0.5	6.1 \pm 0.8	Białostoczczyzna
VM-184	41.3	101.2 \pm 2.2	<1.1	6.1 \pm 1.0	Białostoczczyzna
VV-131	45.5	90.0 \pm 2.2	7.1 \pm 1.3	21.6 \pm 2.1	Puszcza Augustowska (Lipsk), borówka brusznica

W ramach tego projektu, w roku 2001 pobrano próbki ściółek leśnych, roślin i owadów w Borach Niemodlińskich (Tułowice), Beskidzie Żywieckim (Węgierska Górka) i Puszczy Augustowskiej (Płaska). W roku 2002 pobrano kolejne dodatkowe, już tylko roślinne próbki z nadleśnictwa Płaska.

Pobrane próbki roślinne pochodziły z drzew i roślin runa leśnego:

- sosny zwyczajnej (*Pinus silvestris*): młode korzenie, szpilki (roczniki przyrostów: bieżący C, ubiegłoroczny C+1, i dwuletni C+2) oraz pędy młodych, trzyletnich drzewek;
- świerka pospolitego (*Picea excelsa*): kora i szpilki (roczniki C i C+1);
- olchy czarnej (*Alnus glutinosa*): liście;
- borówki - czarnej jagody (*Vaccinium myrtillus*): liście;
- wietlice (*Athyrium sp.*): części nadziemne;
- wrzосу zwyczajnego (*Calluna vulgaris*);

Oznaczaniem gatunków i zebraniem próbek roślinnych zajmował się współpracownicy z Katedry Ekologii Lasu i Wydziału Leśnego AR w Krakowie (dr J. Barszcz, dr St. Małek).

Próbki były suszone przez 24 h w 105°C, mielone i ważone. Wykonywano pomiar gamma spektrometryczny i obliczano aktywności ^{137}Cs i ^{40}K zgodnie z procedurą przyjętą w pracy doktorskiej autora [Mietelski, 1994]. Następnie próbki spopieleno i przeprowadzono analizę radiochemiczną zgodną z procedurami opisanymi w Aneksie 2.

Średni odzysk znaczników dla całego projektu (owady, rośliny, ściółki) wyniósł 76 \pm 20 %, 74 \pm 28 % i 42 \pm 13 %, kolejno dla plutonu, strontu i ameryku.

W tabeli 49 zestawiono wyniki zawartości radionuklidów w próbkach roślinnych z roku 2001 i 2002.

Tabela 49. Wyniki zawartości radionuklidów w próbkach roślinnych z lat 2001-2002.

Miejsce	masa sucha	¹³⁷ Cs	⁴⁰ K	⁹⁰ Sr	²³⁹⁺²⁴⁰ Pu	²³⁸ Pu	²⁴¹ Am	²⁴³⁺²⁴⁴ Cm
rodzaj próbki	(g)	(Bq/kg s.m. ±1 σ)			(mBq/kg s.m. ±1 σ)			
TUŁOWICE								
liście borówki	17.5	570±26	370±52	6±1	11±5	<40	12±5	<1
szpilki sosny C	26.8	504±17	270±45	2±1	2±1	<32	<2	<1
szpilki sosny C+1	48.3	95±4	156±28	9±2	4±1	3±1		
pień 3 letniej sosny	23.8	54±2	127±13	6±1	153±16	<22		
korzenie sosny	105.1	81±3	27±15	8±1	29±5	<2	16±5	<1
szpilki świerka C	25.4	139±4	146±15	10±1	0±1	<24	<2	<1
szpilki świerka C+1	28.1	134±7	177±34	18±3	12±2	<1	6±2	<1
kora świerka (1)	337.8	107±3	35±11	127±22	25±2	<2		
kora świerka (2)	354.1	88±3	40±15	49±11	21±2	3±1		
wietlice	87.2	1220±39	660±38	12±2	10±3	8±2		
WĘGIERSKA GÓRKA								
liście borówki	23.8	13±1	247±27	2±1	42±4	<21	22±4	<1
kora świerka	54.7	8±1	117±14	62±9	11±2	<2	<1	<1
szpilki świerka C+1	38.3	7±1	113±19	13±2	15±2	<2	8±2	<1
wietlice	32.3	8±1	1000±120	10±1	138±11	3±2	370±43	<1
PŁASKA-2001								
liście borówki	63.6	435±13	257±30	56±42	11±1	3±1	11±8	<1
szpilki sosny C	99.9	163±6	140±29	6±1	308±23	<9	383±28	<1
szpilki sosny C+1	63.7	30±2	85±21	8±1	87±9	<4	27±5	<1
szpilki sosny C+2	22.1	21±2	94±24	<4	141±14	<1	13±7	<1
pień 3 letniej sosny	16.0	11±2	266±34	8±2	152±14	14±10	<58	<1
korzenie sosny	115.8	19±1	24±14	43±10	232±17	53±7	164±12	7 ± 2
szpilki świerka C	114.0	237±7	143±23	5±1	107±10	<1	176±14	<1
szpilki świerka C+1	117.0	74±3	86±19	22±3	130±10	<3	24±3	<2
kora świerka	275.3	183±5	38±18	10±3	208±13	31±3	93±13	<1
wietlice	96.8	1270±49	420±54	32±5	244±22	8±2	186±24	5 ± 3
olcha	59.1	4±1	214±28	<2	17±3	13±3	21±4	<1
PŁASKA-2002								
szpilki sosny C	60.2	160±5	201±12	6.0±0.6	<20	<20	4.9±3.0	<1
szpilki sosny C+1	59.8	104±3	219±12	2.9±0.3	2.5±0.6	<2	9.6±5.0	<1
szpilki świerka C	66.5	161±6	236±15	19.7±2.0	103±2	1.6±0.9	6.9±3.5	<1
szpilki świerka C+1	59.1	25±1	160±12	25.6±3.1	3.1±1.8	<2	<13	<1
wrzos	46.4	301±10	216±14	16.1±1.6	43±7	<2	39.7±8.9	<1

Wyniki dla ¹³⁷Cs i ⁴⁰K, znajdujące się niejako z boku snutyh tu rozważań, prezentowane są tu tylko dla uzupełnienia. Rozważanie zauważonych dla nich własności znalazło się w przygotowanej do druku publikacji [Mietelski i inni, 2003c]. Najciekawszą chyba obserwacją było potwierdzenie silnego trendu zmniejszającego zawartość ¹³⁷Cs obserwowaną w próbkach wietlic z Węgierskiej Górki. Próbką z 1987 miała zawartość ¹³⁷Cs równą 15900±234 Bq/kg s.m. [Jasińska i inni, 1990], podczas gdy z 1993 roku już tylko 870±32 Bq/kg s.m. [Mietelski i inni, 1996 b]. Obecnie (2001) jest to już tylko 8±1 Bq/kg s.m.. Aktywność ¹³⁷Cs stwierdzona w ściółce leśnej zmniejszyła się w tym czasie tylko o czynnik cztery. Dla dwóch pozostałych lokalizacji aktywności ¹³⁷Cs we wietlicach pozostawała wysoka. Wietlice były już rozpoznane [Lindner i inni, 1994] jako rośliny charakteryzujące się wysokimi współczynnikami przenikania dla izotopów cezu. Aktywność ⁹⁰Sr w tych wietlicach zmniejszyła się od roku 1987 [Mietelski i inni, 1993] o czynnik około czterech. Natomiast w 1987 nie stwierdzono obecności ²³⁹⁺²⁴⁰Pu we wietlicach z Węgierskiej Górki przy

granicy oznaczalności wynoszącej około 30 mBq/kg s.m., podczas gdy w roku 2001 wyznaczono aktywność 138 ± 11 mBq/kg s.m., a dla Płaskiej nawet blisko dwukrotnie więcej, podczas gdy w Tułowicach tylko 10 ± 3 mBq/kg s.m. .

W szpilkach drzew najwyższe aktywności ^{137}Cs znaleziono dla najmłodszych (oznaczanych w naukach leśnych C - *current*) roczników szpilek, zarówno dla świerka jak i sosny. Zjawisko to jest znane [Ronneau i inni, 1987; Strebl i inni, 1999; Buzinny i inni, 2000; Högbom i Nohrstedt, 2001] i jest interpretowane jako skutek przemieszczania (translokacji) ^{137}Cs wewnątrz drzewa do najmłodszych szpilek. Alternatywnie próbowano go tłumaczyć mniejszym zdrewnieniem młodych szpilek [Strebl et al., 1995] lecz później to wyjaśnienie zarzucono. Podobne zjawisko występuje dla potasu, co jest najlepiej widoczne dla próbek sosny z Płaskiej z roku 2001. Wydaje się, że translokacja nie zachodzi dla ^{90}Sr , natomiast dla Pu i Am przeciwnie – zachodzi! Sugerowały to wyniki dla próbek świerka i sosny z Płaskiej z roku 2001 a próba potwierdzenia tej właściwości była główną przesłanką do poboru dodatkowych próbek w 2002. Niestety wyniki te nie potwierdziły jednoznacznie istnienia tego procesu. Być może problem polega na tym, że próbki z roku 2001 pobrano w wyższych partiach korony świeżo ściętych drzew, a w 2002 z dolnych, dostępnych z poziomu gruntu partii korony. Planuje się przeprowadzenie metodycznych badań tego zjawiska. Zróżnicowanie poziomu mikroelementów w szpilkach w zależności od miejsca w koronie jest zjawiskiem znanym leśnikom. Stwierdzone poziomy stężenia Pu i Am w szpilkach nie są bardzo małe, sięgają w kilku przypadkach ponad 300 mBq/kg s.m.. Najbardziej interesujące jest to, że proporcje aktywności ^{238}Pu do $^{239+240}\text{Pu}$ dla szpilek świerka i sosny z Płaskiej odpowiadają opadowi globalnemu, co wskazuje na pobór korzeniowy z większej głębokości niż warstwy O_H czy też O_F ściółki, dokąd ciągle nie dotarł pluton i ameryk pochodzenia czarnobylskiego. Martwe szpilki opadając na ściółkę zmniejszają tym samym udział frakcji czarnobylskiej w warstwach O_L i O_F , co zostało zaobserwowane.

Aktywności $^{239+240}\text{Pu}$ i ^{241}Am (lecz nie ^{238}Pu) we wrzosach z Płaskiej są względnie łatwo mierzalne. Gatunek ten jest już znany jako kumulujący ^{137}Cs [Fawaris i Johanson, 1994]. W przypadku Płaskiej aktywności ^{137}Cs nie są wysokie. Aktywności sztucznych radionuklidów w olszy są najniższe.

Tabela 50. Wartości stosunków aktywności $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ i $^{243+244}\text{Cm}/^{241}\text{Am}$ dla próbek roślinnych z Płaskiej z roku 2001, dla których aktywności ^{238}Pu (lub $^{243+244}\text{Cm}$) były wyraźnie podwyższone, oraz wynikające stąd oszacowania udziału procentowego opadu $^{239+240}\text{Pu}$ z opadu czarnobylskiego (F_{Pu}) i ^{241}Am (F_{Am}).

próbka	$^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$	$F_{\text{Pu}}[\%]$	$^{243+244}\text{Cm}/^{241}\text{Am}$	$F_{\text{Am}}[\%]$	$^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$ Czarnobyl
liście borówek	0.27 ± 0.09	52 ± 20			
pień 3 letniej sosny	0.09 ± 0.07	13 ± 14			
korzenie sosny	0.23 ± 0.03	42 ± 8	0.043 ± 0.013	85 ± 25	1.4 ± 0.5
kora świerka	0.15 ± 0.02	25 ± 4			
wietlice	0.03 ± 0.01	<3	0.027 ± 0.016	54 ± 33	<300

W tabeli 50 przedstawiono wartości stosunku aktywności $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ i $^{243+244}\text{Cm}/^{241}\text{Am}$ oraz wynikające stąd procentowe udziały frakcji czarnobylskiej $^{239+240}\text{Pu}$ oraz ^{241}Am . W ostatniej kolumnie przedstawiono oszacowanie stosunku aktywności ^{241}Am do $^{239+240}\text{Pu}$ pochodzenia czarnobylskiego. Dla korzeni sosny i kory świerka nie można wykluczyć efektów ubocznych, nie mających wiele wspólnego z biodostępnością radionuklidów takich jak kontaminacja próbki resztami ściółki lub grzybnii (w przypadku korzeni) lub śladów bezpośredniej depozycji opadu czarnobylskiego (w przypadku kory drzew). Tylko dla liści borówki, mającej płytki system korzeniowy tkwiący w ściółce leśnej wyraźny jest efekt poboru korzeniowego Pu pochodzenia czarnobylskiego.

Jak już wspomniano, w badaniach proporcji i skali opadu promieniotwórczego transuranowców z Czarnobyla stosowano również analizy materiału roślinnego [Buzinny i inni, 1994; Bunzl i Kracke, 1990]. Zakładano tam zaniedbywalny poziom aktywności Pu w roślinach wynikający z poboru korzeniowego i zinterpretowano całkowitą zmierzoną aktywność jako pochodzącą z opadu czarnobylskiego. W rozdziale III.1.3 zwrócono uwagę na odmienne proporcje pomiędzy aktywnościami poszczególnych radionuklidów w opadzie badanym bezpośrednio lub w aerozoluach

zatrzymanych na filtrach powietrza a w materiale roślinnym [Mietelski, Dorda i Wąs, 1999]. Aktualnie uzyskane wyniki, wykazujące w roślinach niezerowe aktywności Pu z opadu globalnego, obecnego w nich na skutek poboru korzeniowego, wyjaśniają tą rozbieżność. Oznacza to, że w ewentualnych przyszłych zdarzeń jądrowych stosowanie materiału roślinnego do rekonstrukcji opadu Pu i Am ma określone swoje ograniczenia.

Tabela 51. Wartości współczynników przenikania TF radionuklidów do próbek roślinnych liczone względem koncentracji tych radionuklidów w warstwie O_H ściółki leśnej. Oznaczenia: T – Tułowice, P – Płaska, WG – Węgierska Górka.

Gatunek	miejsce	^{137}Cs	^{40}K	^{90}Sr	$^{239+240}\text{Pu}$	^{238}Pu	^{241}Am	$^{243+244}\text{Cm}$
borówka	T	0.73±0.04	10.3±2.7	0.30±0.07	0.0045±0.0021			
	WG	0.033±0.003	1.1±0.2	0.25±0.13	0.0039±0.0004			
	P ¹⁾	1.45±0.05	2.1±0.4	0.89±0.67	0.0020±0.0002	0.0024±0.0008		
wietlica	T	1.55±0.06	18.3±4.2	0.60±0.13	0.004±0.001	0.047±0.013		
	WG	0.020±0.003	4.3±0.7	1.25±0.20	0.013±0.001	0.010±0.007		
	P	6.45±0.32	2.5±0.5	0.53±0.11	0.029±0.003	0.013±0.003	0.08±0.01	0.24±0.16
sosna	T,C	0.641±0.026	7.5±2.1	0.10±0.05	0.0008±0.0004			
	T,C+1	0.121±0.006	4.3±1.2	0.45±0.12	0.0016±0.0004	0.018±0.006		
	T, pień 3 letnia	0.069±0.003	3.5±0.9	0.30±0.07	0.063±0.008			
	T, korzeń	0.103±0.004	0.8±0.4	0.40±0.08	0.012±0.002			
	P,C	0.827±0.040	0.83±0.21	0.10±0.02	0.037±0.004		0.161±0.018	
	P,C+1	0.152±0.011	0.50±0.14	0.13±0.02	0.010±0.001		0.011±0.002	
	P,C+2	0.107±0.011	0.56±0.16		0.0170.002		0.005±0.003	
	P, pień 3 letnia	0.056±0.010	1.57±0.29	0.13±0.04	0.018±0.002	0.022±0.016		
	P, korzeń ¹	0.070±0.004	0.17±0.10	0.69±0.17	0.036±0.003	0.049±0.007	0.061±0.006	0.16±0.05
świerk	T,C	0.177±0.006	4.1±1.0	0.5±0.1				
	T,C+1	0.170±0.010	4.9±1.4	0.9±0.2	0.0049±0.0009			
	T,kora	0.136±0.005	1.0±0.4	6.4±1.5	0.010±0.001			
	T, kora	0.112±0.005	1.1±0.5	2.5±0.7	0.009±0.001	0.018±0.006		
	W.G. C+1	0.018±0.003	0.5±0.1	1.6±0.3	0.0014±0.0002			
	W.G.koral	0.020±0.003	0.50±0.08	7.8±1.5	0.0010±0.0002			
	P C	1.20±0.05	0.85±0.18	0.08±0.02	0.013±0.001		0.074±0.009	
	P C+1	0.38±0.02	0.51±0.13	0.37±0.07	0.016±0.002		0.010±0.002	
	P, kora	0.93±0.04	0.22±0.11	0.17±0.05	0.025±0.002	0.049±0.006	0.039±0.006	
olcha	P	0.020±0.005	1.27±0.24		0.0020±0.0004	0.020±0.005	0.009±0.002	
wrzos	P	1.53±0.07	1.3±0.2	0.27±0.04	0.0051±0.0009		0.017±0.004	

1 – uwzględniono udział warstwy O_F , tak by stosunek aktywności izotopów Pu był równy stosunkowi w próbce roślinnej.

W tabeli 51 zestawiono wartości współczynnika przenikania (TF) ze ściółki (warstwa O_H) do badanych roślin dla wszystkich badanych radionuklidów. Do uzyskanych wyników należy podchodzić z pewną ostrożnością, analiza wartości stosunków izotopowych Pu przedstawiona powyżej sugeruje, że często źródłem Pu w roślinach są głębsze warstwy gleby. Na pewno jest tak w przypadku drzew i wietlic.

Uzyskane wartości TF ^{137}Cs do borówki czarnej jagody (*Vaccinium myrtillus*) są zgodne z danymi literaturowymi. W Szwecji [Fawaris i Johanson, 1994] stwierdzono średnio 1.04±0.84 (średnia i odch. std., 22 próbek), w Austrii [Strebl i inni, 1995] oceniono go na 0.8, w Polsce [Mietelski, 1994, Mietelski i Jasińska, 1996] otrzymano 1.3±1.4 (średnia i odch. std., 118 próbek) lub 0.74±0.11 [Pietrzak-Flis i inni, 1996]. TF dla ^{137}Cs w przypadku wrzosów z Płaskiej jest blisko czterokrotnie mniejszy niż stwierdzono w Szwecji [Fawaris i Johanson, 1994], lecz jednocześnie bardzo zbliżony do wartości 0.99±0.18 lub 1.23±0.16 stwierdzonych w centralnej Polsce [Pietrzak-Flis i inni, 1996].

Tabela 52. Wartości współczynnika koncentracji (AC) radionuklidów w próbkach roślinnych.

Gatunek	miejsce	^{137}Cs	^{90}Sr	$^{239+240}\text{Pu}$	^{241}Am
		[m ² /kg s.m.]		[(mBq/kg s.m.)/(Bq/m ²)]	
borówka	T	0.063 ±0.003	0.036 ±0.012	0.21 ±0.10	
	WG	0.006 ±0.001	0.03 ±0.02	0.85 ±0.10	
	P	0.214 ±0.009	0.11 ±0.09	0.23 ±0.03	0.6 ±0.4
wietlica	T	0.134 ±0.005	0.072 ±0.024	0.19 ±0.06	
	WG	0.0039 ±0.0005	0.17 ±0.02	2.8 ±0.3	
	P	0.63 ±0.03	0.065 ±0.013	5.0 ±0.6	9.9 ±1.6
sosna	T,C	0.0554 ±0.0023	0.012 ±0.007	0.04 ±0.02	
	T,C+1	0.0104 ±0.0005	0.054 ±0.020	0.08 ±0.02	
	T, pień 3 letnia	0.0059 ±0.0003	0.036 ±0.012	2.9 ±0.4	
	T, korzeń	0.0089 ±0.0004	0.048 ±0.015	0.55 ±0.10	
	P, C	0.080 ±0.004	0.012 ±0.003	6.3 ±0.6	20.5 ±2.4
	P, C+1	0.015 ±0.001	0.016 ±0.003	1.8 ±0.2	1.4 ±0.3
	P, C+2	0.010 ±0.001	2.9 ±0.3	0.7 ±0.4	
	P, pień 3 letnia	0.005 ±0.001	0.016 ±0.005	3.1 ±0.3	
	P, korzeń	0.009 ±0.001	0.09 ±0.02	4.8 ±0.5	8.8 ±1.0
świerk	T,C	0.0153 ±0.0006	0.060 ±0.018		
	T, C+1	0.0147 ±0.0008	0.108 ±0.036	0.23 ±0.04	
	T,kora 1	0.0118 ±0.0004	0.77 ±0.25	0.48 ±0.05	
	T, kora 2	0.0097 ±0.0004	0.30 ±0.11	0.40 ±0.05	
	W.G. C+1	0.0039 ±0.0005	1.07 ±0.19	0.22 ±0.04	
	W.G.korak	0.0034 ±0.0005	0.22 ±0.04	0.30 ±0.04	
	P C	0.117 ±0.005	0.010 ±0.002	2.2 ±0.2	9.4 ±1.1
	P C+1	0.036 ±0.002	0.045 ±0.008	2.7 ±0.3	1.3 ±0.2
	P, kora	0.090 ±0.004	0.020 ±0.007	4.3 ±0.4	5.0 ±0.8
	olcha	P	0.0020 ±0.0005		0.3 ±0.1
wrzos	P	0.148±0.007	0.033 ±0.005	0.9 ±0.2	2.1 ±0.5

Podane wartości TF dla ^{90}Sr wydają się być zbliżone dla TF dla ^{137}Cs , lecz jest to trochę mylące, gdyż tylko mała część ^{90}Sr znajduje się w warstwie O_H . TF dla ^{241}Am ze ściółki do roślin wydaje się być nieznacznie wyższy niż odpowiednie TF dla plutonu. Są one dwa rzędy wielkości mniejsze niż typowe wartości TF dla ^{137}Cs . Zmienność TF dla transaktynowców wydaje się być mniejsza niż dla ^{137}Cs .

W tabeli 52 zamieszczono wartości współczynników koncentracji (AC) dla próbek roślinnych, obliczone względem łącznej aktywności radionuklidów obecnych w zbadanych warstwach ściółki i gleby. Najprawdopodobniej wartości AC dla ^{90}Sr są być może przecenione o rząd wielkości, jako że w badanych warstwach jest obecne prawdopodobnie tylko około 10% całkowitej depozycji ^{90}Sr . Podobnie jak w przypadku TF uzyskane wyniki dla ^{137}Cs są zgodne z danymi literaturowymi dla liści borówek -czarnych jagód [Fawaris i Johnson, 1994; Mietelski, 1994; Mietelski i Jasińska, 1996; Lindner i inni, 1994]. Dla wietlic z Niemiec stwierdzono [Lindner i inni, 1994] AC równe 0.45 m²/kg, obecne wyniki mieszczą się w granicach od 0.0039±0.0005 m²/kg do 0.63±0.03 m²/kg. Dla wrzosu ze Szwecji [Fawaris i Johanson, 1994] AC dla ^{137}Cs oszacowano na równy 0.50±0.06 m²/kg, ale obecne oszacowanie dało 0.148±0.007 m²/kg.

Wartości AC dla Pu i Am są około trzy rzędy wielkości niższe niż dla ^{137}Cs , przy czym wartości AC dla ^{241}Am są na ogół nieznacznie wyższe niż te dla $^{239+240}\text{Pu}$.

III.3.5. Przenikanie radionuklidów do owadów

Do badań biodostępności radionuklidów włączono również owady. Owady stanowią istotny element wielu łańcuchów pokarmowych w ekosystemach leśnych. Przenikanie substancji radioaktywnych do owadów jest słabo poznane, w odróżnieniu od przenikania do bezkręgowców morskich [Swift i Pentreath, 1988; Skwarzec, 1995; Skwarzec i inni, 1999; Kershaw i inni, 2001;]. Istnieje kilka przyczyn takiego stanu rzeczy. W odróżnieniu od stawonogów i mięczaków morskich owady są w europejskim kręgu kulturowym raczej wykluczone z diety człowieka (co nie znaczy że nie są w ogóle spożywane, choć na ogół nieintencjonalnie – np. stanowią zanieczyszczenie mąki). W wielu innych kulturach stanowią istotną część pożywienia, przez co nie są one zupełnie nieistotne z punktu widzenia dozymetrii, choć na pewno nie europocentrystycznej.

Każdą osobę prowadzącą badania środowiskowe nurtuje problem reprezentatywności pobranych do badań próbek. Owady (zwłaszcza latające) odławiane do pułapek feromonowych lub mechanicznych, z racji ilości odławianych osobników pochodzących z dużego obszaru, budzą nadzieję na pozyskanie reprezentatywnej próbki dla danego terenu.

W ostatnich latach rozwija się idea szacowania dawek nie tylko dla człowieka ale dla wszelkich organizmów żywych. Uzyskanie danych nt. aktywności w wybranych gatunkach owadów, z racji skąpości dostępnych wyników w tym zakresie, wydawało się kolejną przesłanką przemawiająca za celowością takiego rozszerzenia badań. Do badań wybrano pospolite gatunki, łatwe do pozyskiwania i zazwyczaj już wykorzystywane jako bio-monitory różnorodnych skażeń chemicznych

Podstawowym gatunkiem był żuk leśny, *Anoplotrupes stercorosus* (Hartm.), (rząd: *Coleoptera*, rodzina: *Geotrupidae*). Jest on jednym z bardziej rozpowszechnionych, dużych europejskich chrząszczy. Okaz dorosły (imago) osiąga ponad 2 cm długości oraz masę 0.35-0.45 g. Żyje w lasach całej strefy paleoarktycznej. Okaz dorosły żywi się martwymi częściami roślin, humusem a czasami grzybami oraz odchodami jeleniowatych. Larwa rozwija się na głębokości około 20 cm w glebie, czerpiąc pokarm z grudki organicznej materii, głównie humusu, przygotowanej przez rodziców. Czas trwania rozwoju zależy od warunków klimatycznych i trwa od roku do dwóch. Pod koniec lata przeobraża się w okaz dorosły, przeżywa zimową hibernację. Do badań bio-monitoringowych (zazwyczaj pod kątem wpływu metali ciężkich lub pestycydów) odławiany jest stosunkowo łatwo w pułapkach mechanicznych (Olszewski, 1979; Szwalko, 1995; Starzyk i Szwalko 1996, Szwalko, 2002)

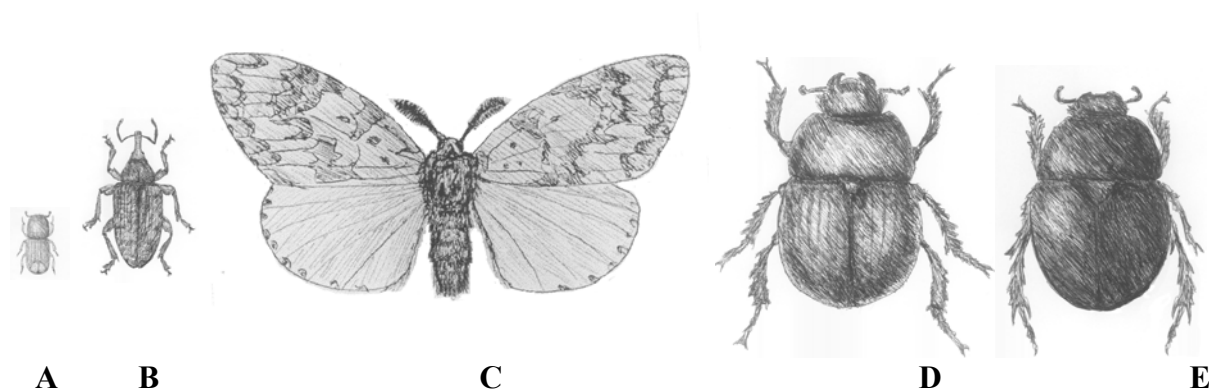
Wykorzystane w badaniach [Mietelski i inni, 2003 b] próbki żuka leśnego pochodziły z materiałów archiwalnych dr P. Szwalko (wówczas z Katedry Entomologii Leśnej AR w Krakowie, obecnie z Muzeum Przyrodniczego PAN). Były to żuki zbierane w latach 1989-1999 w Puszczech Białowieskiej, Niepołomickiej i Augustowskiej oraz w Borach Niemodlińskich. W badaniach wykorzystano też specjalnie pozyskane (w ramach projektu badawczego KBN 6P04G 07520) próbki z roku 2001 zebrane w Puszczy Augustowskiej (nadleśnictwo Płaska) i Borach Niemodlińskich (nadleśnictwo Tułowice). Pobór próbek i wybór materiału do badań przeprowadził dr P. Szwalko. Analizowano aktywność radionuklidów zawartych w całych ciałach osobników dorosłych żuków leśnych. Dla porównania zbadano dwie dodatkowe próbki owadów z rodziny *Geotrupidae*. Obie zawierały dorosłe osobniki należące do gatunku żuk wiosenny *Trypocopris vernalis* (L.). Jest on bardzo podobny morfologicznie do żuka leśnego (rys. 69). Próbki te zostały wyodrębnione z materiału archiwalnego zebranego niejako „przy okazji” do pułapek mechanicznych w Tułowicach i Białowieży. Tryb życia i zwyczaje żywieniowe żuka wiosennego są trochę odmienne niż żuka leśnego, jest to wyłącznie kaprofaż w każdej fazie swojego rozwoju.

Z ciał 180 osobników żuka leśnego odłowionych w Puszczy Augustowskiej w roku 2001 dr P. Szwalko wyodrębnił wybrane organy: kompletne głowy, odnóża (chityna i mięśnie), czysto chitynowe pokrywy skrzydeł, narządy wewnętrzne tułowia i odwłoku (głównie narządy płciowe i przewód pokarmowy) oraz reszta tułowia i odwłoku. Zostało to wykonane dla przeprowadzenia badań zróżnicowania rozmieszczenia radionuklidów w ciałach owadów. Uzyskane wyniki przedstawiono w pracy (Mietelski i inni, 2003 b).

W ramach tego samego projektu badawczego przeprowadzono również badania aktywności substancji radioaktywnych w ciałach innych owadów. Należały one do pospolitych w lasach gatunków (tzw. szkodników upraw leśnych): szeliniak sosnowiec (*Hylobius abietis*), kornik drukarz (*Ips typographus*) oraz brudnica mniszka (*Lymantria monacha*). Próbki te były pozyskane w roku 2002 za pomocą pułapek feromonowych. Pochodziły z terenów Puszczy Augustowskiej (nadleśnictwo Płaska)

oraz powierzchni kontrolnych, z Borów Niemodlińskich (Tułowice) i Beskidu Żywieckiego (Węgierska Górka). Zbadana też próbkę korników z Gorców z 1999 r.

Szeliniak sosnowiec (rzząd: *Coleoptera*, rodzina: *Curculionidae*) to chrząszcz leśny o długości osobnika dorosłego ok. 13 mm, jako imago żywi się pędami sosny, larwa rozwija się w glebie (20-30 cm) na obumierających korzeniach sosny. Kornik drukarz (*Coleoptera*, *Scolytidae*) to mały chrząszcz o długości około 5 mm, jego rozwój i żerowanie ściśle związane ze świerkiem, we wszystkich postaciach żeruje w łyku świerka. Brudnica mniszka (rzząd: *Lepidoptera*, rodzina: *Lymantriidae*), jej gąsienica to foliofag głównie żywiący się szpilkami sosny (a także świerka i innych drzew). Sylwetki badanych owadów przedstawiono na rysunku 69.



Rys. 69. Sylwetki badanych gatunków owadów (skala 3:2): A- kornik drukarz, B - szeliniak sosnowiec, C - brudnica mniszka, D - żuk leśny, E - żuk wiosenny.

Zestawienie liczebności osobników w badanych próbkach przedstawiono w tabeli 53. Liczbę osobników w jednej próbce uzyskiwano z przeliczenia próbki lub szacowano na podstawie wyjściowej masy 30 lub 50 osobników wybranych losowo oraz wyjściowej masy całej próbki. Liczba osobników w próbce była limitowana dostępnością materiału badawczego.

Tabela 53. Liczba osobników w badanych próbkach.

Gatunek	Liczba próbek	Liczebność osobników			
		Minimalnie	Maksymalnie	Średnia arytmetyczna	Odczylenie standardowe
Żuk leśny	24	67	749	300	172
Żuk wiosenny	2	100	220		
Szeliniak sosnowiec	2	448	2367		
Kornik drukarz	5	4970	37500	17120	13740
Brudnica mniszka	2	312	551		

Pewną trudność metodologiczną stanowił sposób normalizacji uzyskanych wyników. Próbki archiwalne były suszone w powietrzu, niektóre były konserwowane glikolem inne alkoholem etylowym. Suszenie nawet trwające całą dobę nie prowadziło do stałej masy. Dlatego zdecydowano się na normalizację wyników względem masy spopielonej w 400°C.

Przed przystąpieniem do analiz radiochemicznych na zawartość ^{90}Sr , ^{241}Am i izotopów plutonu każda próbka była analizowana na niskotłowym spektrometrze gamma w celu oznaczenia aktywności substancji gamma promieniotwórczych, przede wszystkim ^{137}Cs , lecz również innych jak np. śladów ^{154}Eu (pochodzenia czarnobylskiego), naturalnych pierwiastków promieniotwórczych (np. ^{40}K , ^{226}Ra , ^{228}Ra) czy też ewentualne ślady kosmogenicznego ^{22}Na . Aktywności promieniowania gamma spopielonej próbki mierzono w geometrii płaskiego cylindra (średnica 50 mm, wysokość około 5 mm), wykorzystywanej zwykle do pomiaru aktywności sprasowanych filtrów powietrza,

względem krzywej kalibracyjnej uzyskanej dla wzorca ineterkalibracyjnego z CLOR. Dla uniknięcia pylenia popiół nasączano wodnym roztworem sacharozy i następnie suszono. Pomiary gamma-spektrometryczne spopielonych wydrębnionych części żuków wykonano wykorzystując germanowy detektor wnąkowy kalibrowany dla ^{40}K i ^{137}Cs za pomocą 0.5 g materiału referencyjnego IAEA –Soil 375 (IAEA, 2000).

Po pomiarze gamma-spektrometrycznym próbki spopielano i mineralizowano. W mineralizacji oprócz standardowej procedury stosowano dodatkowo kwas nadchlorowy (HClO_4) i perhydrol (H_2O_2), by rozłożyć sacharozę a następnie utlenić powstały węgiel. Pluton, ^{90}Sr i ^{241}Am wydzielano zgodnie z procedurą stosowaną w Laboratorium, opisaną w Aneksie 2. Do analiz ^{90}Sr zastosowano najnowszą wersję procedury wykorzystującą znacznik ^{85}Sr wytworzony w IFJ za pomocą akceleratora AIC-144 w lipcu 2001 r. (za wyjątkiem próbki korników z Gorców analizowanej w oparciu o wcześniejszą wersję metody). Wykonano kontrolną analizą zawartości radionulidów w odsączonym płynie konserwującym (alkohol etylowy). Nie stwierdzono wypłukiwania substancji radioaktywnych do tego płynu.

Zestawienie wyników analiz aktywności radionuklidów w ciałach owadów przedstawiono w tabeli 54. Przykłady uzyskanych widm promieniowania gamma, beta i alfa przedstawiono na rysunkach 70-73.

Pewne intuicyjne oczekiwania potwierdziły się, a inne nie. Najwyższe stężenia $^{238,239+240}\text{Pu}$, ^{241}Am , oraz $^{243+244}\text{Cm}$ stwierdzono dla spopielonych próbek żuka leśnego z Puszczy Augustowskiej. Najwyższą zawartość ^{137}Cs miała również próbka żuka leśnego (ale z Tułowic), wynosiła ona 13.8 ± 0.2 kBq/kg m.p.. Spodziewano się względnie wysokich aktywności plutonu i ameryku dla żuka leśnego z racji jego żywienia się humusem i ściółką leśną. Pewnym zaskoczeniem było to, że poziomy aktywności ^{137}Cs oraz ^{90}Sr dla brudnicy mniszki były tak niskie, dla radiocezu uzyskano tylko górne oszacowanie aktywności. Jej gąsienica zjada duże ilości szpilek drzew, zawierające względnie łatwo mierzalne ilości obu izotopów. Oznacza to najprawdopodobniej, że czas biologicznego półzaniku ^{137}Cs i ^{90}Sr w tych organizmach jest krótki. Natomiast dla próbki z Płaskiej mierzalne było stężenie $^{239+240}\text{Pu}$, wynosiło ono 0.65 ± 0.13 Bq/kg m.p.. Dla ^{90}Sr najwyższe zawartości, rzędu niespełna 1.5 kBq/kg m.p. obserwowano dla spopielonych korników z Augustowa. Generalnie, korniki wykazywały względnie wysoką zawartość ^{90}Sr , od 0.56 ± 0.03 kBq/kg m.p. do 1.43 ± 0.19 kBq/kg m.p. Mediana rozkładu aktywności ^{90}Sr dla tego gatunku wynosiła 806 Bq/kg m.p., co odpowiada w przybliżeniu 77 Bq/kg s.m., przy czym próbki z Puszczy Augustowskiej mają około dwukrotnie wyższe aktywności ^{90}Sr niż próbki z Polski Południowej. Wydaje się to potwierdzać stwierdzony wcześniej niezaniebdywalny poziom depozycji ^{90}Sr z Czarnobyla w Polsce północno-wschodniej. Żuk wiosenny i szeliniak sosnowiec zawierają mniejsze aktywności szukanych radionuklidów niż żuk leśny.

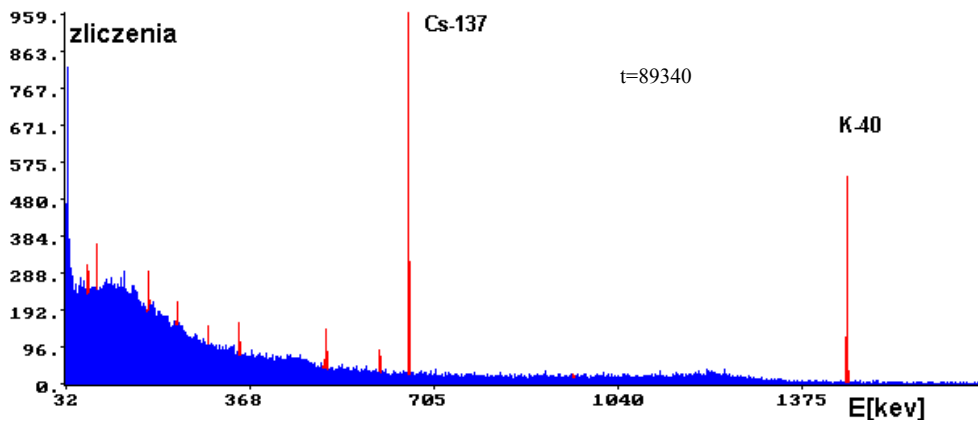
Włączenie ^{90}Sr (widoczne głównie dla próbek korników) oraz izotopów plutonu i ameryku (widoczne dla żuka leśnego z Płaskiej) do obiegu mikroelementów w środowisku leśnym potwierdza hipotezę o nastąpieniu już istotnej dekompozycji „gorących cząstek” (Kashparov i inni, 1999).

Duże różnice w aktywności dla żuka leśnego stwierdzono dla różnych lokalizacji w Puszczy Niepołomickiej. Próbki z powierzchni n2 i n3 mają o rząd wielkości wyższe aktywności ^{137}Cs od tych dla próbki z n5, próbka z n1 ma pośrednie wartości. Nie widać takiej tendencji w przypadku plutonu i ameryku. Głównym czynnikiem różnicującym te powierzchnie wydaje się być tzw. typ siedliskowy danego lasu – powierzchnia n5 znajdowała się w lesie liściastym, podczas gdy pozostałe to las mieszany.

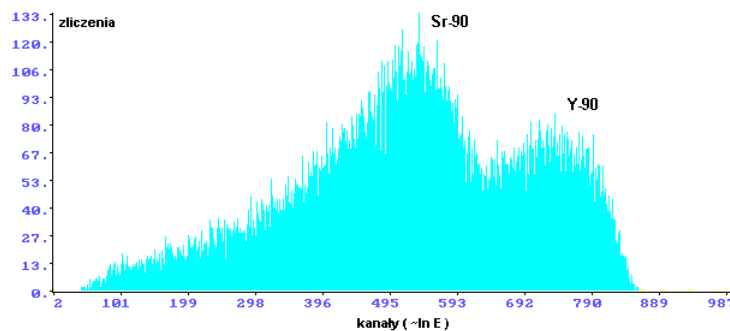
Dla próbek żuka leśnego, z racji dużej liczby próbek, można przeprowadzić pewną analizę statystyczną, dzieląc próbki na populacje pochodzące z Polski Północno-Wschodniej (Puszcze Białowieska i Augustowska) oraz z Polski Południowej (Bory Niemodlińskie, Puszcza Niepołomicka). Aktywności $^{239+240}\text{Pu}$, ^{241}Am a w szczególności ^{238}Pu są istotnie wyższe. Przeprowadzając test-t (z poprawką Welcha) różnice w aktywnościach ^{238}Pu i ^{241}Am pomiędzy tymi populacjami są „krańcowo znaczące”, na poziomie istotności $p=0.0006$ w obu przypadkach. Również test statystyczny Mann’a-Whitney’a rozpoznaje różnice tych populacji jako „krańcowo znaczące”. Dla $^{239+240}\text{Pu}$ różnice są „bardzo znaczące” dla obu testów, podczas gdy różnice dla ^{137}Cs są „nieznaczące”. Analizy statystyczne wykonano za pomocą programu komputerowego InStat (prod. Graph Pad).

Tabela 54. Wyniki zawartości radionuklidów w spopielonych próbkach osobników dorosłych owadów

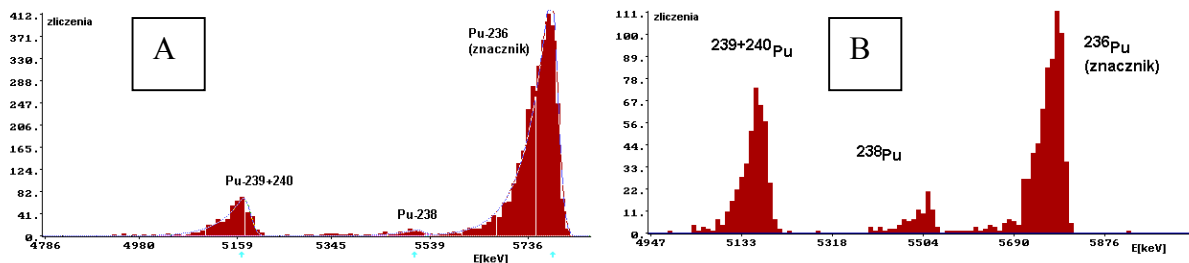
kod pow./ rok	¹³⁷ Cs	⁴⁰ K (kBq/kg m.p.± 1σ)	⁹⁰ Sr	²³⁹⁺²⁴⁰ Pu	²³⁸ Pu (Bq/kg m.p.± 1σ)	²⁴¹ Am	²⁴³⁺²⁴⁴ Cm
żuk leśny							
Puszcza	Białowieska						
b3/94	0.51±0.02	1.91±0.15	<0.010	0.52±0.08	0.04±0.03	0.24±0.08	
b3/97	0.49±0.02	1.31±0.17	0.013±0.003	3.24±0.28	0.40±0.13	0.39±0.21	
b5/90	5.53±0.11	2.37±0.52	<0.036	6.03±0.45	1.17±0.24	1.00±0.45	
b5/92	1.74±0.04	5.24±0.32	<0.025	2.47±0.20	0.77±0.15	1.30±0.40	
b5/93	1.98±0.09	1.40±0.67	ND	5.85±0.46	0.95±0.21	2.92±0.76	
b5/94	1.19±0.05	3.14±0.43	<0.056	3.64±0.25	1.34±0.46	0.87±0.81	
b5/95	2.37±0.07	2.29±0.33	ND	1.07±0.10	0.09±0.06	0.89±0.52	
b5/96	1.94±0.05	2.63±0.29	<0.023	2.26±0.20	0.64±0.08	1.24±0.31	
b5/97	1.23±0.06	1.38±0.38	0.028±0.040	3.40±0.32	0.55±0.13	1.80±0.67	
b5/98	1.59±0.04	1.89±0.23	0.013±0.004	3.06±0.24	0.67±0.13	1.72±0.41	
b5/99	0.95±0.03	1.39±0.23	ND	1.88±0.16	0.37±0.08	1.09±0.44	
Puszcza	Augustowska						
a/89	3.20±0.15	4.25±1.16	ND	4.44±0.50	0.80±0.25	1.53±0.75	
Płaska 01/a	6.72±0.08	6.91±0.47	0.142±0.018	5.49±0.39	1.49±0.17	3.01±0.50	0.19±0.06
Płaska 01/b	6.71±0.06	8.48±0.36	0.161±0.021	5.69±0.40	1.20±0.13	2.00±0.22	0.10±0.04
Puszcza	Niepołomska						
n1/93	1.68±0.06	4.58±0.55	0.025±0.007	1.83±0.27	0.18±0.16	0.62±0.21	
n1/94	0.96±0.05	3.09±0.54	0.029±0.006	0.71±0.08	0.01±2.27	0.08±0.08	
n2/93	5.72±0.11	5.24±0.70	0.019±0.005	2.90±0.45	0.02±0.56	0.67±0.40	
n2/94	3.85±0.24	4.75±2.16	0.050±0.025	4.14±1.04	0.41±0.33	0.66±0.23	
n3/93	5.37±0.18	6.67±1.31	0.055±0.037	1.83±0.48	0.14±0.28	0.72±0.48	
n3/94	3.53±0.11	4.95±0.97	0.049±0.018	1.19±0.40	0.02±0.07	0.81±0.41	
n5/93	0.24±0.02	3.11±0.36	0.048±0.013	1.04±0.19	0.50±0.20	0.21±0.07	
n5/94	0.31±0.05	4.67±0.65	0.055±0.017	0.40±0.11	0.09±0.08	0.32±0.15	
Tułowice	t/94-96						
t/01	7.82±0.15	4.66±0.88	0.041±0.007	1.54±0.18	0.46±0.10	0.51±0.14	
t/01	5.03±0.96	3.00±0.57	0.026±0.004	0.99±0.12	0.29±0.07	0.33±0.09	
t/01	13.78±0.21	9.45±1.54	<0.027	1.14±0.20	0.04±0.10	0.41±0.25	
żuk wiosenny							
Puszcza	Białowieska						
tb/90-99	1.22±0.07	1.99±0.90	0.181±0.055	1.71±0.21	0.43±0.12	0.22±0.11	
Tułowice	tt/94-95						
tt/94-95	6.95±0.14	4.73±1.01	0.032±0.008	0.31±0.09	0.31±0.09	0.23±0.09	
brudnica mniszka							
Tułowice 01	<0.050	7.01±0.89	<0.011	0.074±0.060	0.173±0.129	0.27±0.10	
Płaska 01	<0.073	5.17±1.38	0.097±0.015	0.65±0.13	<0.11	<0.7	
kornik drukarz							
Tułowice 01	0.410±0.023	1.73±0.21	0.56±0.03	0.023±0.011	0.011±0.009	<0.02	
W. Górka 01	0.014±0.003	1.90±0.14	0.77±0.10	0.011±0.003	0.013±0.003	<0.005	
Gorce 00	0.200±0.012	2.96±0.11	0.81±0.11	0.024±0.018	<0.007	<0.11	
Płaska 01	0.060±0.005	1.00±0.10	1.27±0.32	0.024±0.008	<0.01	<0.07	
Król. Woda	0.290±0.021	2.10±0.24	1.43±0.19	<0.10	<0.02	<0.09	
01(Augustów)							
szeliniak sosnowiec							
Tułowice 01	0.750±0.021	4.65±0.27	0.290±0.031	0.52±0.06	<0.34	0.14±0.10	
Płaska 01	0.423±0.047	2.13±0.42	0.177±0.019	2.07±0.17	0.10±0.04	0.72±0.22	



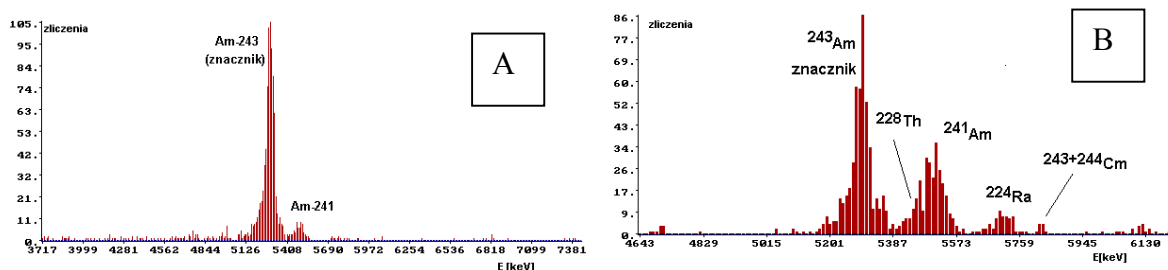
Rys. 70. Widmo promieniowania gamma spopielennej próbki korników (Gorce).



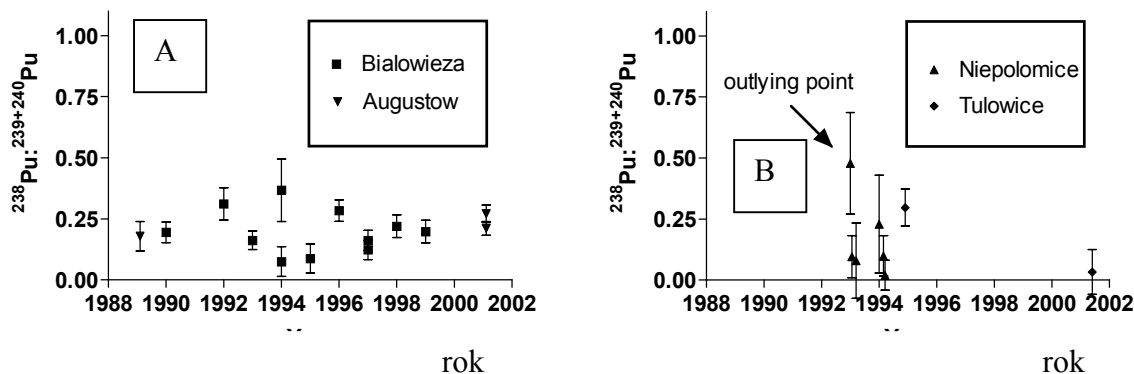
Rys. 71. Widmo promieniowania beta strontu wydzielonego radiochemicznie (Sr-Spec) z próbki korników z Gorców.



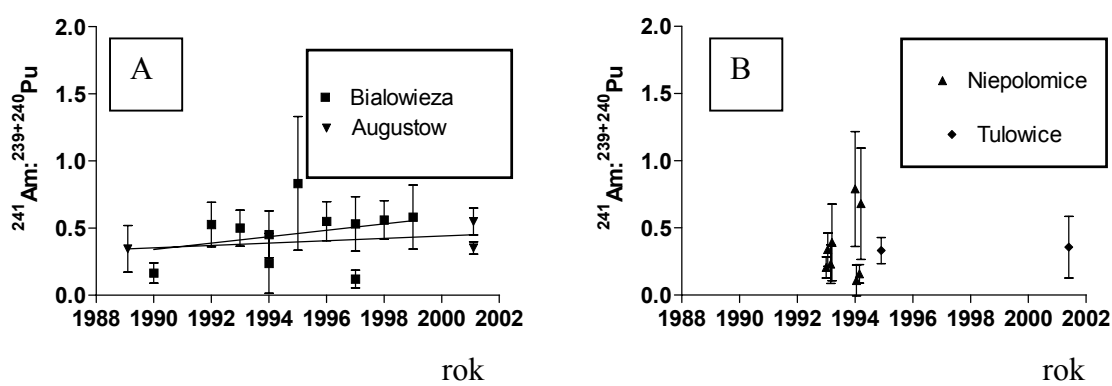
Rys. 72. Porównanie widm promieniowania alfa plutonu wydzielonego radiochemicznie z blisko siedemdziesięciogramowych próbek żuków leśnych pochodzących z (A) Borów Niemodlińskich (czas pomiaru 10 dni) i (B) z Puszczy Augustowskiej (czas pomiaru 3 dni).



Rys. 73. Widmo promieniowania alfa frakcji Am+Cm wydzielonej radiochemicznie z blisko siedemdziesięciogramowych próbek żuków leśnych pochodzących z (A) Borów Niemodlińskich (czas pomiaru 6.7 dni) i (B) z Puszczy Augustowskiej (czas pomiaru 5.7 dni).



Rys. 74. Zmienność w latach stosunku aktywności ^{238}Pu do $^{239+240}\text{Pu}$ w próbkach żuka leśnego z Polski północno-wschodniej (A) i południowej (B).



Rys. 75. Zmienność w latach wartości stosunku aktywności ^{241}Am do $^{239+240}\text{Pu}$ w próbkach żuka leśnego z Polski północno-wschodniej (A) i południowej (B). Linie ciągłe są otrzymane w wyniku dopasowania prostej metodą najmniejszych kwadratów.

Stwierdzone różnice sugerują, że radionuklidy z opadu „gorących cząstek” były już biodostępne w przeszłości, w chwili poboru próbek (od 1989). Na rysunku 74 przedstawiono zależność czasową wartości stosunku aktywności $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$. Średnia wartość (\pm odch. std.) tego stosunku dla populacji północno-wschodniej wynosi 0.203 ± 0.083 , co oznacza, że średnio około 33 % $^{239+240}\text{Pu}$ pochodzi z Czarnobyla. Analogiczny średni stosunek aktywności dla populacji południowej wynosi 0.135 ± 0.154 , co oznacza, że około 20 % $^{239+240}\text{Pu}$ było pochodzenia czarnobylskiego. Jednak wartość ta jest być może zawyżona przez jeden punkt pomiarowy (obarczony dużym błędem). Po jego odrzuceniu średnia wartość stosunek wynosi 0.097 ± 0.102 , co odpowiada już tylko 13 % udziałowi czarnobylskiego Pu.

Na rysunku 75 przedstawiono zmienność wartości stosunki aktywności $^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$. Średnie wartości wynoszą 0.451 ± 0.189 i 0.360 ± 0.220 , kolejno dla populacji północno-wschodniej i południowej. Dla opadu globalnego wartość ta jest zbliżona do 0.3 [UNSCEAR, 1982], natomiast na silnie skażonych opadem czarnobylskim terenach Białorusi [Kudryashev i inni, 2001] stosunek ten sięga 1.5, na skutek rozpadu ^{241}Pu , a więc znacznie więcej niż stwierdzono dla populacji północno-wschodniej. Przedstawione dane nie wykluczają istnienia słabej tendencji do wzrostu wartości tego stosunku (po samoistnym uwzględnieniu trywialnego efektu wynikającego z rozpadu ^{241}Pu , gdyż próbki analizowane były w jednym czasie). Tendencja taka mogłaby wynikać z nieznacznie wyższej przyswajalności Am niż Pu.

Na rysunku 76 przedstawiono zależność zawartości w próbkach żuka leśnego wybranych radionuklidów. Stężenia izotopów plutonu między sobą oraz $^{239+240}\text{Pu}$ z ^{241}Am były ze sobą skorelowane, lecz nie były skorelowane z ^{137}Cs , który z kolei korelował najsilniej z ^{40}K .

Wyniki analizy gromadzenia się radionuklidów w ciałach owadów przedstawiono w tabeli 55. . Około 45% aktywności stwierdzono w „pozostałych częściach tułowia i odwłoku”. Blisko 35% aktywności ^{90}Sr stwierdzono w odnóżach. Pu i Am znajdowały się prawie wyłącznie w „pozostałych częściach...” oraz w organach wewnętrznych (zawierających przewód pokarmowy a w nim możliwe resztki pokarmu).

Tabela 55. Procentowy udział aktywności radionuklidów w poszczególnych częściach ciała żuka leśnego.

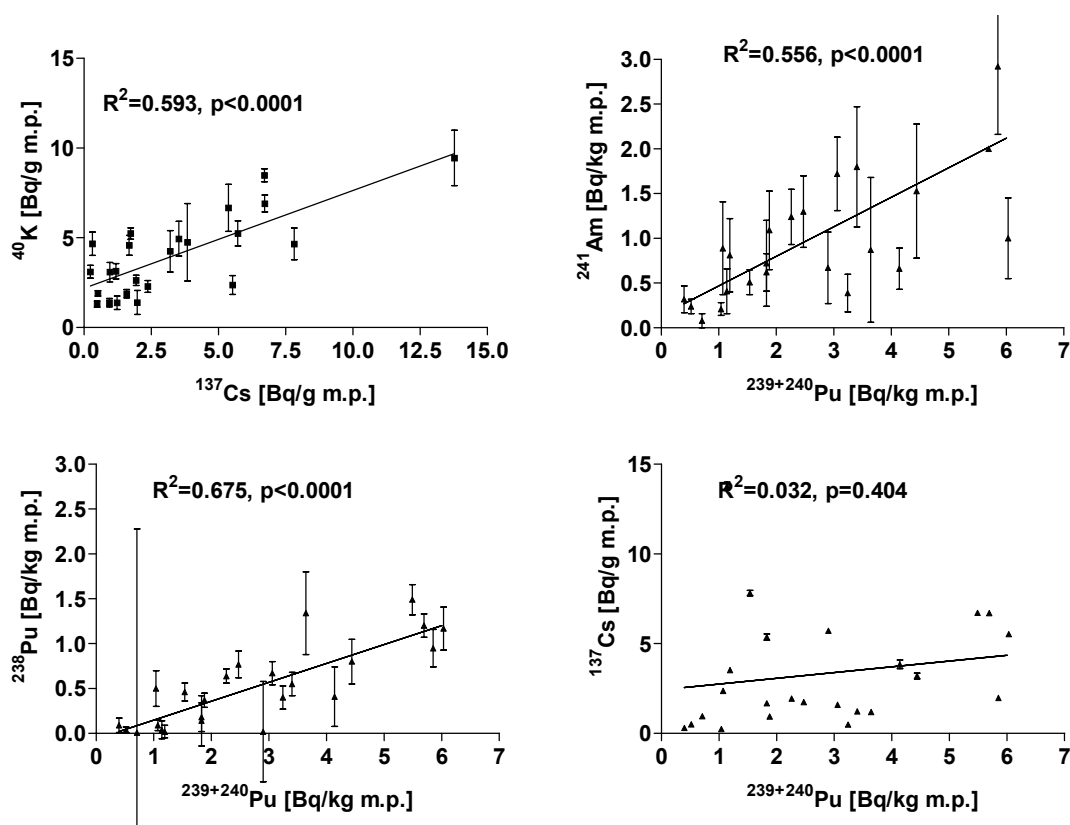
część ciała	^{137}Cs	^{40}K	$^{239+240}\text{Pu}$	^{90}Sr	^{241}Am
	[%]				
głowa	9.0±0.6	7.9±0.8	3.2±0.9	1.1±0.4	1.9±2.9
pokrywy skrzydeł	9.7±0.9	9.3±1.0	3.1±0.9	3.5±5.4	6.9±4.7
odnóża	17.8±1.2	17.0±1.8	1.5±0.7	35.5±9.4	1.0±0.3
wewnętrzne organy tułowia i odwłoku	19.9±1.3	16.7±1.7	44.0±5.2	19.5±4.5	45.6±7.1
pozostałe części ciała	43.7±1.7	49.1±3.2	48.2±5.8	40.3±5.0	44.7±11.5

Tabela 56. Znormalizowane na procent masy spopielonego ciała, jaki dane narządy lub części ciała stanowiły, udziały aktywności radionuklidów w częściach ciała żuka leśnego.

część ciała	m	^{137}Cs	^{40}K	$^{239+240}\text{Pu}$	^{90}Sr	^{241}Am
	[%]					
głowa	10.3	0.87±0.06	0.77±0.08	0.32±0.09	0.11±0.04	0.18±0.28
pokrywy skrzydeł	8.7	1.11±0.10	1.07±0.11	0.36±0.10	0.41±0.62	0.79±0.54
odnóża	21.9	0.81±0.06	0.77±0.08	0.07±0.03	1.62±0.43	0.04±0.01
wewnętrzne organy tułowia i odwłoku	12.7	1.56±0.10	1.31±0.14	3.45±0.41	1.53±0.36	3.58±0.55
pozostałe części ciała	32.5	1.34±0.05	1.51±0.10	1.48±0.18	1.24±0.15	1.37±0.35

W tabeli 56 przedstawiono wyniki z tabeli 55 znormalizowane na procent masy spopielonego ciała, jaki dane narządy czy części ciała stanowiły. Jednostkowe wartości odpowiadałyby równomiernemu rozłożeniu radionuklidów w ciele. Wartości większe od 1 informują o względnej kumulacji danego radionuklidu w danej części ciała. Dla Pu i Am wartości blisko 3.5 razy przekraczające jednorodny rozkład stwierdzono dla wewnętrznych organów tułowia i odwłoku, mogących jednak zawierać resztki pożywienia, w tym ściółkę leśną.. Dwukrotnie mniejszą kumulację stwierdzono dla „pozostałych części ciała”, co już bez wątpliwości wiąże się z obecnością Pu i Am w tkankach owada. Najniższe poziomy zarówno Pu jak i Am (mają one generalnie bardzo zbliżony rozkład) stwierdzono w odnóżach. Inny schemat rozkładu ma ^{90}Sr . Obecny był głównie w odnóżach, wewnętrznych organach i pozostałych częściach ciała, natomiast najmniej obecny był w głowie. Rozkład ^{137}Cs i ^{40}K jest najbardziej zbliżony do równomiernego, jednak i tu widać zróżnicowanie. Mniej w odnóżach i głowie, więcej w pokrywach skrzydeł, najwięcej w organach wewnętrznych i pozostałych częściach ciała.

Aktywności w ściółkach leśnych oraz aktywności w roślinach, na których żerują dane owady, Wyznaczone na terenach, skąd pochodzą próbki owadów, pozwalają obliczyć współczynniki przenikania (TF) i koncentracji (AC) do owadów. Wyniki zestawiono kolejno w tabelach 57, 58 i 59.



Rys. 76. Zależności aktywności radionuklidów stwierdzone dla próbek żuka leśnego.

Tabela 57. Współczynniki przenikania (TF) do owadów dla poszczególnych radionuklidów z warstwy O_H .

Gatunek owada	Miejsce	^{137}Cs	^{40}K (Bq/kg m.p.) / (Bq/kg s.m.)	^{90}Sr	$^{239+240}\text{Pu}$	^{238}Pu	^{241}Am	$^{243+244}\text{Cm}$
brudnica mniszka	Tułowice		195±50		0.03±0.02			
	Płaska		31±9	1.62±0.33	0.08±0.02			
żuk leśny	Tułowice	6.4±0.2	83±24	1.3±0.3	0.41±0.06			
	Płaska ¹⁾	22.4±0.5	55±8	2.3±0.3	0.99±0.08	1.19±0.15	1.08±0.19	3.7±1.2
	Płaska ¹⁾	24.9±0.6	62±8	2.6±0.4	0.89±0.08	1.12±0.14	0.75±0.09	2.3±0.9
szeliniak sosnowiec	Tułowice	0.95±0.03	129±30	14.5±2.7	0.21±0.03			
	Płaska	2.15±0.25	13±3	3.0±0.5	0.25±0.03	0.16±0.06	0.30±0.10	
kornik drukarsz	Tułowice	0.52±0.03	48±12	27.9±4.5	0.09±0.05	0.07±0.05		
	W.Górka	0.04±0.01	8.2±1.1	96±17	0.0010±0.0003	0.044±0.011		
	Płaska	0.30±0.03	6±1	21.2±6.0	0.003±0.001			

1) – uwzględniono udział warstwy O_F , tak by stosunek aktywności ^{238}Pu do $^{239+240}\text{Pu}$ w ściółce równał się stwierdzonemu u owada.

Tabela 58. Zakresy wartości współczynnika przenikania radionuklidów z danego pożywienia (próbki odniesienia) do owadu - konsumenta [(Bq/kg m.p.)/Bq/kg s.m.)].

Gatunek	próbka odniesienia	^{137}Cs	^{90}Sr	$^{239+240}\text{Pu}$	^{241}Am
kornik drukarz	kora świerka	0.51÷4.2	12÷560	0.11÷1.1	<2
brudnica mniszka	szpilki sosny	<0.32	<0.17	<31	<200
szeliniak sosnowiec	korzenie sosny	9÷39	38÷46	14÷18	<28

Tabela 59. Wartości współczynnika koncentracji (AC) radionuklidów w owadach.

Gatunek	Miejsce	^{137}Cs	^{90}Sr	$^{239+240}\text{Pu}$	^{241}Am
[m ² /kg m.p.]					
brudnica mniszka	Tułowice			0.0014 ±0.0011	
	Płaska		0.20 ±0.04	0.013 ±0.003	
żuk leśny	Tułowice	0.553 ±0.017	0.16 ±0.05	0.019 ±0.003	
	Płaska	3.31 ±0.11	0.29 ±0.05	0.113 ±0.011	0.16 ±0.03
	Płaska	3.31 ±0.11	0.33 ±0.06	0.117 ±0.011	0.11 ±0.02
szeliniak sosnowiec	Tułowice	0.082 ±0.003	1.75 ±0.53	0.0099 ±0.0014	
	Płaska	0.21 ±0.02	0.36 ±0.06	0.043 ±0.004	0.04 ±0.01
kornik drukarz	Tułowice	0.045 ±0.003	3.36 ±0.97	0.0004 ±0.0002	
	W.Górka	0.0068 ±0.0015	13.2 ±2.1	0.0002 ±0.0001	
	Płaska	0.030 ±0.003	2.59 ±0.73	0.0005 ±0.0002	

III.4. Interpretacja dozymetryczna uzyskanych wyników

Główną drogą narażenia radiacyjnego człowieka w przypadku izotopów Pu i Am jest inhalacja pyłów zawierających te radionuklidy. Dla ^{90}Sr ważniejsza jest droga pokarmowa. W pracy doktorskiej [Mietelski, 1994] autor przeprowadził oszacowanie dawki od inhalacji drobnych „gorących cząstek typu paliwowego”. Oszacowanie to zawierało założenia dotyczące aktywności niektórych radionuklidów takich jak ^{241}Pu i ^{90}Sr . Badania prowadzone w ciągu kolejnych kilku lat, przedstawione również w niniejszej pracy potwierdziły słuszność tamtych założeń.

Aktywność ^{137}Cs w świeżych jagodach wynosiła [Mietelski, 1994) około 10% aktywności obserwowanej w suchych liściach, co odpowiada stosunkowi utraty masy w czasie suszenia. Jeśli podobnie dzieje się dla ^{90}Sr , to maksymalne stężenie ^{90}Sr w jagodach wynosi 21 Bq/kg (świeżej masy). Zjedzenie 1 kg takich jagód prowadzi (Kendall i inni, 1987) do otrzymania dawki równoważnej wynoszącej 0.7 μSv (dla dorosłego w czasie 50 lat) lub 1 μSv (dla dziecka, w okresie 70 lat). Nie należy spodziewać się żadnego ryzyka radiologicznego związanego z tak niskimi dawkami.

Interpretacja dozymetryczna obserwowanych w grzybach, czy też w roślinach aktywności emiterów alfa, silnie zależy od ich form chemicznych, które na obecnym etapie są nieznanne. Jeśli formy te są nieorganiczne i charakteryzują się małą wartością współczynnika f_1 opisującego ich przenikanie do organizmu z przewodu pokarmowego (np. dla tlenków) to nawet znacznie większe aktywności przyjmowane drogą pokarmową prowadzą do zanedbywalnie małych dawek. Choć nie ma w tej chwili pewności, że nuklidy te nie są wbudowane w cząsteczki organiczne, dla których wartość f_1 mogą być znacznie większe, obserwowane aktywności są znikome i nawet przy $f_1=1$ prowadziły by do bardzo małych dawek dla człowieka.

Kości dzikich zwierząt nie są spożywane, w odróżnieniu od mięsa lub wątroby. Stężenia Pu i Am zmierzone, lub tylko oszacowane, w kościach jako rzędu pojedynczych mBq/kg pozwalają oszacować ich zawartość w wątrobach zwierząt. Jeśli kości zwierzęcia ważyłyby 10 kg, a jego wątroba 2 kg, to jeśli wątroba zawiera 70% Pu i Am zawartego w ciele, a kości 20%, wówczas koncentracja w wątrobie powinna być w przybliżeniu 17 razy większa od koncentracji w kościach. Daje to poziom kilkudziesięciu mBq/kg wątroby, co w dalszym ciągu nie stanowi zagrożenia radiologicznego o ile wątroba taka na stanowi elementu diety codziennej.

Dawki od skażeń widocznych w owadach są zupełnie zanedbywalne, gdyż jak już wspomniano w naszym kręgu kulturowym owady szczęśliwie nie są włączane świadomie do diety człowieka, w odróżnieniu od szeregu innych kultur, gdzie stanowią niekiedy cenione przysmaki, a bez wątpienia są łatwym do pozyskiwania i wartościowym, wysokobiałkowym pokarmem.

Oddzielnym zagadnieniem budzącym coraz większe zainteresowanie jest kwestia dawek otrzymywanych nie przez człowieka ale przez dowolne inne organizmy zwierzęce i roślinne [IAEA, 1999; UNSCEAR, 1996; Strand i inni, 2000; Krajewski, 2000]. Jest to traktowane jako element tzw. antropopresji na różne ekosystemy, ponadto wpływa na częstość mutacji, a tym samym na tempo procesu ewolucji.

Podsumowanie i wnioski

Przedstawione wyniki badań jednoznacznie potwierdzają fakt depozycji z opadem czarnobylskim na terenie Polski północno-wschodniej, zwłaszcza w Puszczy Augustowskiej, izotopów: ^{238}Pu , ^{239}Pu , ^{240}Pu , ^{241}Pu , ^{242}Pu , ^{241}Am , $^{243+244}\text{Cm}$, ^{90}Sr i ^{154}Eu . Skala tego opadu znacznie przekracza dotychczasowe, ogólnie akceptowane oszacowania dotyczące udziału tych radionuklidów w depozycji opadu czarnobylskiego w Polsce. Opadowi temu nie towarzyszyły zwiększone, ponad wartości typowe dla Polski, aktywności ^{137}Cs , co najprawdopodobniej jest wynikiem selektywnej depozycji z chmury radioaktywnej, nie stykającej się bezpośrednio z podłożem, względnie dużych, a więc kilkumikronowych aerozoli, mających skład podobny do znacznie większych „gorących cząstek” badanych intensywnie na przełomie lat osiemdziesiątych i dziewięćdziesiątych XX w.

Aktywności w opadzie małych „gorących cząstek” sięgały 30 Bq/m^2 łącznie dla alfa-promieniotwórczych izotopów plutonu (^{238}Pu , ^{239}Pu , ^{240}Pu i śladowe aktywności ^{242}Pu), 1 kBq/m^2 dla ^{241}Pu , około 2 kBq/m^2 w przypadku ^{90}Sr . Po rozpadzie ^{241}Pu w połowie bieżącego stulecia, skumulowana depozycja czarnobylskiego ^{241}Am będzie sięgać około 50 Bq/m^2 .

Stwierdzono mobilność i biodostępność Pu i Am w środowisku leśnym. Eksperyment nad wymywaniem Pu i Am ze ściółki ujawnił potencjalnie (przy zmianach pH na zasadowe) większą mobilność izotopów Pu i Am nawet niż ^{137}Cs , i znacznie większą niż izotopów U i Th. Ponadto stwierdzono mierzalne aktywności Pu i Am w roślinach naczyniowych oraz Pu w grzybach. Aktywności Pu w grzybach kapeluszowych z Puszczy Augustowskiej związane były z opadem czarnobylskim, podczas gdy w próbkach z Polski południowej głównie z opadem globalnym. Podobny wynik uzyskano dla roślin runa leśnego (liści borówek-czarnych jagód). Natomiast stwierdzone zawartości Pu i Am w szpilkach drzew iglastych z Augustowa, przekraczały dla niektórych próbek 100 mBq/kg s.m. , lecz były związane z opadem globalnym. Oznacza to, że ich źródłem był pobór korzeniowy z głębszych warstw gleby. Uzyskane wyniki sugerują istnienie dla Pu i Am zjawiska translokacji w obrębie drzewa tych radionuklidów do rosnących szpilek. Sugerowane jest też ich niejednorodne rozmieszczenie w poszczególnych partiach korony drzewa (większe w wyższych partiach). Zjawiska takie są znane dla wielu mikroelementów oraz dla ^{137}Cs .

Izotopy pochodzące z „gorących cząstek” zostały stwierdzone w zbadanych tkankach i organizmach zwierzęcych: kościach ssaków i w owadach. Zmierzono aktywności ^{90}Sr w kościach dzikich zwierząt sięgające 600 Bq/kg m.p. . W kościach małych ssaków stwierdzono niekiedy zaskakująco wysokie, bo sięgające 90 mBq/kg m.p. aktywności $^{239+240}\text{Pu}$ i mniejsze lecz też względnie wysokie aktywności ^{241}Am , przy względnie umiarkowanych aktywnościach ^{90}Sr . Zawartość Pu i Am te są o rząd wielkości większe od skażeń obserwowanych dla reniferów, które to zwierzęta są zazwyczaj uważane za szczególnie narażone na wchłanianie radionuklidów z racji żywienia się porostami. Wydaje się, że jest to skutkiem inhalacji aerozoli zawierających te radionuklidy.

Stwierdzono obecności plutonu i ameryku w ciałach i organach wewnętrznych żuka leśnego oraz całych ciałach innych owadów. Potwierdzona została przydatność badań owadów do badań skażeń radioaktywnych środowiska. Stwierdzono względnie wysokie aktywności ^{90}Sr w kornikach. Wyniki te potwierdziły dobrze znane zjawisko intensywnego udziału ^{90}Sr w obiegu mikroelementów w środowisku semi-naturalnym. Intensywne przenikanie ^{90}Sr do korników wskazuje na możliwość kumulowania się tego radionuklidu w organizmach zwierząt żywiących się kornikami, a więc głównie ptaków owadożernych. Ma to duże znaczenie dla rozumienia procesów populacyjnych związanych z katastrofami jądrowymi.

Uzyskane wyniki aktywności w materiałach biologicznych oraz badania wymywalności radionuklidów ze ściółek leśnych wykazują że „gorące cząstki typu paliwowego” uległy już całkowitej dekompozycji.

Zaprezentowane w pracy wyniki dotyczące aktywności radionuklidów nie sygnalizują istnienia związanego z nimi aktualnie istotnego zagrożenia radiologicznego dla człowieka. Dlaczego więc podejmuje się takie badania? Głównym powodem jest aspekt czysto poznawczy. Oprócz rozpoznania aktualnego poziomu skażeń badania takie pozwalają poznawać procesy migracji i kumulacji badanych pierwiastków w różnych elementach środowiska. Uzyskane dane mają duże znaczenia dla prognozowania rozwoju sytuacji radiologicznej w przypadku ewentualnych przyszłych zdarzeń jądrowych: wypadków, katastrof, wojen czy też ataków terrorystycznych.

Wykorzystane metody analityczne (radiochemiczne i pomiarowe) nie odbiegają od dobrych standardów światowych dla pomiarów niskich aktywności. Dalsze doskonalenie zaprezentowanych w pracy metod radiochemicznych to przede wszystkim wprowadzenie nowej metody mineralizacji – z zastosowaniem mineralizatorów mikrofalowych. Wprowadzenie tego udoskolenia powinno zaowocować praktycznie całkowitym wyeliminowaniem nierozpuszczonych pozostałości materiałów matrycowych próbki oraz skróceniem czasu pracy poświęcanego na etap wstępny analizy radiochemicznej. Osiągalnym udoskoleniem stosowanych metod pomiarowych jest skonstruowanie i zastosowanie osłony antykomptonowskiej spektrometru promieniowania gamma. Dalszy wzrost czułości pomiarów gamma- i beta- spektrometrycznych byłby osiągalny po umieszczeniu aparatury w laboratorium podziemnym. Wydaje się to obecnie nieosiągalne. Pożądany byłby rozwój na terenie kraju techniki pomiarów stężeń izotopów ciężkich pierwiastków z wykorzystaniem spektrometrii masowej.

Przedstawione w pracy metody spektroskopii jądrowej wspomaganej radiochemicznym koncentrowaniem i wydzielaniem szukanych radionuklidów stanowią narzędzie badawcze wykorzystywane nie tylko do badania skażeń radioaktywnych środowiska. Techniki te mają rosnące znaczenie wspomagające dla niektórych wyrafinowanych ekspertymentów fizyki jądrowej i fizyki cząstek elementarnych - wszędzie tam, gdzie kluczowe znaczenie ma ocena poziomu tła promieniowania pochodzącego od śladów naturalnych i sztucznych substancji radioaktywnych zawartych w materiałach konstrukcyjnych i w otoczeniu systemów detekcyjnych tych eksperymentów. Badania takie już rozpoczęto w IFJ (Mietelski, 2002 b).

Podziękowania

Omawiane tu wyniki były w większości przedmiotem publikacji, wymienionych wśród pozycji literaturowych. W większości badań przedstawionych w niniejszej pracy uczestniczyli Kolażanki i Koledzy z IFJ, w ostatnich latach, przede wszystkim: Mgr Paweł Gaca oraz Mgr inż. Ewa Tomankiewicz, a wcześniej Mgr inż. Bogdan Wąs. W części badań uczestniczyli również: Mgr Mirosława Jasińska i Mgr Sylwia Grabowska oraz Dr inż. Paweł Zagrodzki i Mgr Erazm M. Dutkiewicz. W niektórych przedstawionych w pracy badaniach współpracownikami byli również: Mgr Jerzy Dorda z Instytutu Fizyki Uniwersytetu Śląskiego, Dr Nora Vajda z Instytutu Techniki Jądrowej Politechniki Budapesztańskiej, Mgr Mirosław Tomczak a zwłaszcza nieodżałowanej pamięci Dr Marek Zalewski z Zakładu Biofizyki AM w Białymstoku oraz Prof. Mike Ketterer z Uniwersytetu Północnej Arizony w Flagstaff. Wszystkim tym Osobom składam wyrazy głębokiej wdzięczności.

Zastosowane metody radiochemiczne wzorowałem głównie na pracach mojego „radiochemicznego guru” Dr Jerrego J. LaRosa, niegdyś z Laboratorium IAEA w Seibersdorfie (Austria) obecnie z Marine Environmental Laboratory IAEA w Monako. Badania wspomagali od strony biologicznej współpracownicy: z Wydziału Leśnego Akademii Rolniczej w Krakowie Dr inż. Józef Barszcz, Dr inż. Stanisław Malek oraz Dr inż. Przemysław Szwałko (obecnie z Muzeum Przyrodniczego PAN w Krakowie), z Instytutu Biologii Akademii Pedagogicznej w Krakowie Dr Ryszard Kozik oraz z UMCS w Lublinie Dr Ignacy Kitowski. Autor składa raz jeszcze wszystkim współpracownikom bardzo serdeczne podziękowania za pomoc okazaną w realizowaniu tych badań.

W praktycznych zagadnieniach aparaturowych pomoc okazali: Dr hab. Marian Wójcik (UJ), Dr Zbigniew Hajduk, mgr Leszek Hajduk (konstrukcja detektora mionów promieniowania kosmicznego), Jan Jurkowski (naprawy detektorów germanowych), inż. Edward Białkowski (detektory krzemowe), oraz inż. Roman Hajduk (konserwacja elektroniki). Bardzo serdecznie dziękuję za to wsparcie okazywane najczęściej w trudnych chwilach.

Szczególne podziękowania należą się Mgr Mirosławie Jasińskiej, długoletniej Kierownicze Laboratorium Badań Skazań Radioaktywnych Środowiska; „matkowała” nam wszystkim, dzieliła się swą wiedzą i doświadczeniem, stworzyła warunki rozwoju, w których praca była radością. Za wsparcie pragnę też podziękować poprzedniemu Kierownikowi Zakładu IX IFJ Prof. dr hab. Zdzisławowi Szegłowskiemu. Dziękuję też Dyrekcji IFJ za okazywaną przychylność dla prowadzonych prac.

Serdecznie wdzięczny jestem mojej Żonie, Marioli, oraz naszym Dzieciom: Małgorzacie, Jackowi i Marcie za wieloletnie, zazwyczaj cierpliwe, znoszenie mojego pracoholizmu wciąż nie przekładającego się na prozaiczny wzrost stopy życiowej naszej rodziny...

Równie serdecznie dziękuję moim Rodzicom, całej mojej bliższej i dalszej Rodzinie i Przyjaciółom, za to choćby, że tylko są, choć niektórzy, bardzo ważni, pozostali już tylko w pamięci...

“Last but not least” – dozgonnie wdzięczny jestem również Prof. dr hab. Henrykowi Morozowi, mojemu nauczycielowi matematyki w szkole podstawowej, za ukazanie na początku tej drogi piękna nauk ścisłych.

J.W. Mietelski

w Krakowie, marzec 2003

LITERATURA

- Absalom J.P., Young S.D, Crout N.M.J., Nisbet A.F., Woodman R.F.M, Smolders E., Gillett A.G. (1999). Predicting soil to plant transfer of radiocesium using soil characteristics, *Environmental Science and Technology*, **33**, p. 1218-1223.
- Absalom J.P., Young S.D, Crout N.M.J., Sanchez A., Wright S.M., Smolders E., Nisbet A.F., Gillett A.G. (2001). Predicting the transfer of radiocesium from organic soils to plants using soil characteristics, *J. Environmental Radioactivity*, **52**, p. 31-43.
- Ageev V.A., Vyrichek S.L., Levshin E.B., Odincov A.A., Osmolovskaja N.K., Sacuk V.A (1996). Singularities of radioactive contamination and migration of transuranic elements and fission products in close zone of Chernobyl NPP, *Report CN-63/329, In: Book of Extended Synopses of International Conference: "One Decade After Chernobyl"*, Vienna, 8-12 April 1996, IAEA, WHO, Vienna.
- Aguilar-Benitez M., Barnett R.M., Crawford R.L., Eichler R.A., Frosch R., Gopal G.A., Haynes K.G., Hernandez J.J., Hinchliffe I., Hoehner G., Lynch G.P., Manley D.M., Montanet L., Porter F.C., Primack J., Rittenberg A., Roos M., Roper L.D., Schindler R.H., Schubert K.R., Shimada T., Shrock R.E., Tornquist N.A., Trippe T.G., Trower W.P., Wohl C.G., Yost G.P., and B. Armstrong & G.S. Wagman (1986). Particle Properties Data Booklet (from Review of Particle Properties, *Phys. Rev.* **170 B**), North Holland, Amsterdam.
- Alberts J.J., Wahlgren M.A., Orlandini K.A., Durbahn C.A., *J. Environ. Radioact.* **9** (1989) 89-96.
- Alexakhin R.M., Ginsburg L.R., Mednik I.G., Prokhorov V.M. (1994), Model of ^{90}Sr cycling in a forest biogeocenosis, *The Science of the Total Environment*, **157**, p. 83-91.
- Alexandrov D.V., Beliatsky A.F., Glukhov Yu.A., Nikolski E.Yu., Novatsky B.V., Oglobin A.A., Stepanov D.N. (1984). *Pisma Zh. Eksper. Teor. Fiz.*
- Ardisson G. (1996). Cluster radioactivity: twelve years later, wEds. F.David, J.C.Krupa, *Book of Extended Abstracts, 4th International Conference on Nuclear and Radiochemistry*, St Malo, 8-13.IX. 1996, Institute de Physique Nucleaire, Orsay, p. A-K.
- Aston F.W. (1919) The Constitution of the Elements, *Nature* **104**. s. 393.
- Asikainen (1981). State of disequilibrium between ^{238}U , ^{234}U , ^{226}Ra and ^{222}Rn in groundwater from bedrock, *Geochimica et Cosmochimica Acta* **45**, p. 201-206.
- Avery S.V. (1996) Fate of cesium in environment: Distribution between the abiotic and biotic components of aquatic and terrestrial ecosystems, *J. Environmental Radioactivity*, **30**, p. 139-171.
- Bakken L.R., R.A.Olsen (1990). Accumulation of radiocesium in fungi; *Canadian Journal of Microbiology* **36** p.704-710
- Barnard W.M., Halbig J.B. (1985) Rare Earth Elements in Soil from Selected Areas on the Island of Hawaii, *Pacific Science*, **39** (3) p. 241-259.
- Barnett C.L., Dodd B.A., Boresford N.A., Self P.L., Frankland J.C., Howard B.J. (1997) Radionuclide contamination of fruit bodies of macrofungi in England & Wales: A survey of contamination levels and dietary intake habits. Final Report of Project No. T07051W1, MAFF contract no. RP0425, Institute of Terrestrial Ecology, Grange-over-Sands.
- Becquerel A.H.(1896). *Comptes Rendus* 122, 420, 501, 559, 689, 762 oraz 1089.
- Bertoli M. de, Ganglione P., Malvicini A., Van der Sticht E., in. *Radiation Protection* (Ed. W.S. Snyder), Pergamon Press, Oxford 1968, Part 2 p. 1053
- Biazarov L.(1993).Lichens as indicators of radioactive contamination, *Journal of Radioecology*, **1** No 1 , p. 15-20.
- Biernacka. M, Henschke J., Jagielak J. (1991). Radiologiczna mapa Polski. *Bezpieczeństwo Jądrowe i Ochrona Radiologiczna* **8**, Warszawa.
- Bojanowski, R., Radecki, Z., Knapieńska-Skiba, D. (1995). The Distribution of ^{137}Cs , $^{239+240}\text{Pu}$ and ^{210}Po in the Pomeranian Bay (Southern Baltic) Ecosystem, *Bulletin of the Sea Fishiers Institute*, **3** (136), 15-24.
- Bondietti E.A. (1982). Mobile species of Pu, Am, Cm, Np and Tc in the environment, IAEA-SM-257/42, p.81-96.
- Boroń K., Mietelski J.W., Lipka K., Gaca P., Jasinska M. (2001). Radionuclides in raised bogs on example of „Bór za Lasem” in Orawsko-Nowotarska Valley in Tatra Mountains Foothill, Poland, *Journal of Environmental Monitoring*. **3** No 3, p. 324-329.

- Bouchama, H., Cara, J., Froment, P., Ronneau, C. Vanbegin, J. , Pollanen, R., Toivonen, H , Salbu, B., Krekling, T., Lind, O.C (1999). Properties of nuclear fuel particles and releases of radionuclides from carrier matrix. RAFF DG XII final report., May 1999, Oslo-Helsinki-Bruxells, CD-ROM.
- Bramnden B.H., Evans D., Mason J.V. (1981). Cząstki elementarne, PWN, Warszawa.
- Britannica (1991). The New Encyclopaedia Britannica, Encyclopaedia Britanica Inc., Chicago, Geneva, ..., Toronto.
- Broda R., Grębosz J., Wrześniński J. (1986), Raport z pomiarów skażeń radioaktywnych po katastrofie czarnobylskiej; *Raport IFJ* No 1330/B, Kraków
- Broda R. (1987): Gamma spectroscopy analysis of hot particles from the Chernobyl fallout; *Acta Physica Polonica* **B18** No 10; p. 935-950
- Broda R., Kubica B., Szegłowski Z., Zuber K., (1989). Alpha Emitters in Chernobyl Hot Particles. *Radiochemica Acta* **48**, 89-96.
- Broda R., Mietelski J.W., Sieniawski J. (1992) Radioactive ^{125}Sb and ^{60}Co in "Ruthenium" Hot Particles From Chernobyl Fallout; *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, Letters*, **166** no 3 p. 173-180.
- Browne E., Firestone R.B. (1986). Table of Radioactive isotopes. John Willey & Sons, Inc., New York, ..., Singapore.
- Bulman R.A., (1978). The Movement of Plutonium, Americium and Curium Through the Food Chain, *Naturwissenschaften* **65** , p. 137-143
- Bunzl K. , Schimmack W. (1991). Kinetics of the sorption of ^{137}Cs , ^{85}Sr , ^{57}Co , ^{65}Zn and ^{109}Cd by the organic horizons of forest soil, *Radiochimica Acta* **54**, p.97-102.
- Bunzl K, Kracke W. (1990). Simultaneous Determination of ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$, ^{241}Pu , ^{241}Am , ^{241}Cm , ^{244}Cm , ^{89}Sr , ^{90}Sr in Vegetation Samples, and Application to the Chernobyl-fallout contaminated Grass: *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, Articles*, **138** (1), 83-91.
- Buzinny M., Los I., Tsigankov N., Soroka S. (1996) Monitoring of the ^{241}Pu in the Ukraine; In: *Advances in Liquid Scintillation Spectrometry 1994*, Ed. G.T.Cook, D.D.Harkness, A.B.MacKenzie, B.F.Miller and E.M.Scott, *Radiocarbon*, Tuscon, Arizona, p. 97.
- Buzinny M., Los' I., Shepelevich K. (2000). The distribution of ^{137}Cs and ^{90}Sr in the biomass of pine trees planted in 1987-1988 in the near zone of the Chernobyl Nuclear Power Plant, *Applied Radiation and Isotopes*, **52**, 905-910.
- Casadesus J., Sauras T., Gonze M.A., Vallejo R., Brechignac F. (2001). A nutrient –based mechanistic model for predicting the root uptake of radionuclides; w: *Radioactive Pollutants – Impact on the Environment*, eds. Brechignac F., Howard B., EDP Sciences, Les Ulis, 2001, p. 209-240.
- Cerenkov P.A. (1934). *Doklady Akademii Nauk SSSR*, **2**, 451
- Chibowski S., Gładysz A. (1999) Examination of radioactive contamination in the soil-plant system and their transfer to selected animal tissues, *Polish Journal of Environmental Studies*, **8**, 19.
- Choppin G.R. (1988). Chemistry of actinides in the environment, *Radiochimica Acta* **43**, p. 82-83.
- Choppin G.R., Liljenzin J.O., Rydberg J. (1995). Radiochemistry and nuclear chemistry (2nd edition), Oxford, Butterworth-Heinemann.
- Choppin G.R., Morgenstern A. (2001). Distribution and movement of environmental plutonium. *Plutonium in the Environment*, Ed. A.Kudo, p. 91-106, Elsevier, Amsterdam, ..., Tokyo, 2001.
- Courti A., Goutelard F., Burger P., Blotin E., (2000) Development of a beta-spectrometer using PIPS technology, *Applied Radiation and Isotopes*, **53**, 101-108.
- Cuddlhy R.G., Finch G.L, Newton G.J., Hahn F.F., Mewhinney J.A., Rothenberg S.J., Powers D.A. (1989). Characteristics of Radioactive Particles Released from the Chernobyl Nuclear Reactor. *Environ. Sci. Technology* **23** , 89-95.
- Currie L. (1968) Limits for qualitative detection and quantitative determination: Application to radiochemistry, *Anal. Chem.* **40**, 585.
- Cywicka-Jakiel T., Grychowski P., Hajdas I., Jasińska M., Kołakowski L., Łoskiewicz J., Mazgaj Zb, Mikulski J., Ochab E. (1988): Radioactivity measurements of water, milk and dairy products, vegetables and grass from the surroundings of Kraków on the aftermath of Chernobyl reactor accident; *Raport IFJ* No 1407/AP, Kraków, 1988.

- Dahlgaard H., Eriksson. M., Ilus E., Ryan T., Mc Mahon C.A., Nielsen S.P. (2001). Plutonium in the marine environment at Thule, NW Grenland after a nuclear weapons accident. *Plutonium in the Environment*, Ed. A.Kudo, p. 15-30, Elsevier, Amsterdam, ..., Tokyo, 2001.
- Denschlag H.O., Diel A., Glassel K.-H., Heimann R., Kaffrell N., Knitz U., Menke H., Trautmann N., Weber M., Herrman G. (1987): Fallout in the Mainz Area from the Chernobyl Reactor Accident; *Radiochimica Acta* 41, 163-172.
- Devell L, Tovedal H., Bergstrom U., Appelgreen A., Chyessler J., Anderson L. (1986): Initial Observation of Fallout from Reactor Accident at Chernobyl; *Nature* 321 (1986), p.192-193
- Dovlete C. (1990). Hot Particles Identified in Deposition Samples in Romania During 1988-1990., In: *Proceedings of the International Symposium on Post-Chernobyl Environmental Radioactivity Studies in East European Countries, Kazimierz nad Wisła, 17-19 Sept. 1990*, 49-52, Lublin, UMCS Press.
- Elrick R.H, Parker R.P. (1968), The use of Cerenkov radiation in the measurement of beta-emitting radionuclides, *International Journal of Applied Radiation and Isotopes*, 19, 263-271.
- Edvarson K., Low K., Sisefsky J., (1959) Fractionation phenomena in nuclear weapon debris, *Nature* 4701, p. 1771-1774.
- Eisenbud M. (1987). *Environmental Radioactivity from Natural, Industrial and Military Sources* (3rd edition), *Academic Press*, Orlando, 1987
- Euroatom (1996). Podstawowe normy bezpieczeństwa dotyczące ochrony zdrowia przed promieniowaniem jonizującym pracowników i ogółu ludności. Dyrektywa Rady Unii Europejskiej 96/29/Euroatom, Bezpieczeństwo Jadrowe i Ochrona Radiologiczna, Nr 4/96.
- Fawaris B.H., Johanson K.J. (1994). Radiocesium in soil and plants in a forest in central Sweden, *The Science of the Total Environment*, 157, 133-138.
- Fields P.R., Friedman A.M., Milsted J., Lerner J., Stevens C.M, Metta D, Sabine W.K. (1966). Decay properties of plutonium –244 and comments on its existence in nature. *Nature* 212, p. 131-134.
- Filella M., Parthasarathy N., Buffle J., Humic and Fulvic Compounds, *Encyclopedia of Analytical Science*, Eds. A.Townshend, Vol. 4, p.2017-2027, Academic Press, London,...,Toronto, 1995.
- Florkowski T., Grabczak J., Kuc T., Różański K. (1987) Tracing of the Radioactive Cloud in Kraków After the Chernobyl Nuclear Accident; *Report INT 215/I*, Academy of Mining and Metallurgy press, Kraków (Poland).
- Francis A.J. (1994) Microbial transformation of radioactive wastes and environmental restoration through bioremediation. *J. Alloys and Compounds*, 213, p. 226-231.
- Francis A.J. (2001). Microbial transformations of plutonium and implications for its mobility. *Plutonium in the Environment*, Ed. A.Kudo, p. 201-220, Elsevier, Amsterdam, ..., Tokyo, 2001.
- Frank I.M, Tamm I.G. (1937), *Doklady Akademii Nauk SSSR* 14, 109
- Fujikawa Y., Zheng J., Cayer I., Sugahara M., Takigami H., Kudo A., *J.Radioanal. and Nucl. Chem.* 240 (1999) 69-74.
- Gaca P., Mietelski J.W., Kitowski I., Grabowska S., Tomankiewicz E. (2003), ^{40}K , ^{137}Cs , ^{90}Sr , $^{238,239+240}\text{Pu}$ and ^{241}Am in skulls of small mammals eaten by owls and in some skeletons of owls from Poland, przesłane do *Journal of Environmental Radioactivity*.
- Gentili A., G.Gremigni, V.Sabbatini (1991). Ag-110m in Fungi in Central Italy after the Chernobyl Accident; *J.Environ. Radioactivity* 13 75-78
- Grueter H., Eine selektive Anreicherung des Spaltproduct Cs-137 in Pilzen; *Naturwissenschaften*, 51: 161. (1964)
- Guillitte O., A.Fraiture, J.Lambinon - Transfer of radionuclides in natural and semi-natural environments, Elsevier App. Sci., London (1991) p.468-476
- Guillitte O., M.C.Gasia, J.Lambinon, A.Fraiture, J.Colard, R.Kirchmann, i inni - La Radiocontamination des Champignons sauvages en Belgique et au Grand-Duche de Luxembourg apres l'Accident Nucleaire de Tchernobyl: *Mem.Soc.Roy.Bot.Belg.* 9: 79-93 (1987).
- Harley J.H. (Editor) (1972). HASL Procedures Manual, *Report HASL-300*, US Atomic Energy Agency, New York 1972., p. E-Pu-02-01
- He L.M., Neu M.P., Vanderberg L.A. (2000) Bacillus lichenformis gamma-glutamyl exepolymer: Physicochemical characterization and U(VI) interaction, *Environmental Science and Technology*, 34 p. 1694-1701.

- Henrot J. (1989). Bioaccumulation and chemical modification of Tc by soil bacteria, *Health Physics*, **57** p. 239-245.
- Heusser G. (1996), Cosimic ray interaction study with low-level Ge-spectrometry, *Nuclera Instruments and Methods in Physics Research A* 369, p. 539-543.
- Hinton T.G., Pinder E. III (2001.) A review of plutonium releases from the Savannah River Site, subsequent behavior within terrestrial and aquatic environments and the resulting dose to humans. *Plutonium in the Environment*, Ed. A.Kudo, p. 413-436, Elsevier, Amsterdam, ..., Tokyo, 2001.
- Hoffman D.C, Lawrence F.O., Mewherter J.L, Rourke F.M. (1971). Detection of plutonium –244 in nature. *Nature* **234**, p. 132-132.
- Hoffmann E. de, Charette J., Stroobant V. (1998). Spektrometria mas, WNT, Warszawa.
- Holm E., Ballestra S., Methods for Radiochemical Analyses of Plutonium, Americium and Curium, within the "Measurements of Radionuclides in Food and the Environment - A Guidebook", *IAEA Technical Report Series No. 295*, IAEA Press, 1989, Vienna.
- Högbom L., Nohrstedt H.-Ö., (2001). The fate of ¹³⁷Cs in coniferous forests following the application of wood-ash, *The Science of the Total Environment*, **280**, p.133-141.
- Hryniewicz A.Z, Rokita E. (redaktorzy pracy zbiorowej). (1999). Fizyczne metody badań w biologii, medycynie i ochronie środowiska, PWN, Warszawa.
- IAEA (1986),–INSAG, *IAEA Safety Series No.75*, Vienna 1986, p. 34,
- IAEA (1989) Measurements of Radionuclides in the Food and the Environment, *IAEA Technical Report 295*, IAEA press, Vienna.
- IAEA (1991). International Advisory Committee *The International Chernobyl Project Technical Report*, IAEA Press, Vienna p. 184 .
- IAEA (1993) - AQCS Reference Materials , IAEA press, Vienna, p. 25
- IAEA-IUR (1994). Handbook of parameters values for the prediction of radionuclide transfer in temperate environment, *Technical Reports Series No. 364*, IAEA, Wiedeń.
- IAEA (1998). IAEA-AQCS Catalogue for Reference materials and Intercomparison Exercises 1998/1999; IAEA-AQCS, Vienna.
- IAEA, 1999. Protection of the Environment from the Effects of Ionizing Radiation, IAEA-TECEDOC-1091, (1999)
- IAEA Analytical Quality Control Services (2000). Reference Materials Catalogue 2000-2001, IAEA, Vienna.
- Ibrahim J.K. (1995). Nuclear Weapon Testing: A review of issues, A review report by the Malaysian Institute for Nuclear Technology Research, Kajang, October 1995 (p. 1-14) (<http://www.mint.gov.my/news/jamal1.htm>).
- ICRP (1972). The Metabolism of Compounds of Plutonium and Other Actinides; ICRP publication **19**, Pergamon Press, Oxford.
- ICRP (1979) Publication **30** with Supplements , Pergamon Press, New-York 1979.
- ICRP (1986). The Metabolism of Plutonium and Related Elements, ICRP publication **48**, Pergamon Press, Oxford.
- ICRP (1993). Age-dependent doses to members of the public from intake of radionuclides, ICRP Publication 67, Ann. ICRP 23, No 3-4.
- Irlweck K., J.Wicke (1998) Isotopic composition of plutonium immision in Austria after the Chernobyl accident. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, **227**, 113.
- Jacquot L, O.Daillant, (1997). Bio-accumulation des metaux lourdes et aytres elements-traces par les lichens, *Bulletin de l' Observatoire Mycologique*, numero 12, 1997.
- Jaracz P., Piasecki E., Mirowski S., Wilhelmi Z. (1990) Analysis of Gamma-Radioactivity of "Hot Particles" Released after the Chernobyl Accident - *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, Articles. **141** No 2, p. 243-259
- Jaracz P., Mirowski S., B.Piasecki, Wilhelmi Z.(1992). New Data on Hot Particles from the Chernobyl Accident.: *Proceedings of International Symposium on Radioecology: Chemical Speciation - Hot particles, Znojmo, Czech Republic, 12-16.Oct. 1992*.
- Jaracz P., Mirowski S., Trzcińska A, Isajenko K., Jagielak J., Kempisty T., Józefowicz E.T. (1995) Calculation and Measurements of ¹⁵⁴Eu and ¹⁵⁵Eu in 'Fuel-Like' Hot Particles from Chernobyl Fallout, *J.Environ.Radioactivity* **26**, p. 83-97.

- Jasińska M., Kozak K., Mietelski J.W., Greszta J., Barszcz J.; Radioactive Contamination of the Forest of Southern Poland and Finland; *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, Letters* **146** /1/ 1-13 (1990).
- Johnstone R.A.W., Rose M.E. (2001). Spektrometria mas. PWN, Warszawa.
- Kabata-Pendias A., Pendias M. (1993). Pierwiastki śladowe w środowisku biologicznym, PWN, Warszawa.
- Kapała J., Zalewski M., Karpińska M. (1996). Radiocesium concentration in herbs collected at northeastern Poland, *Materiały Szkoły PTBR "Chernobyl – 10 lat później", Zakopane 14-18. X. 1996.*
- Kashparov V.A., Oughton D.H., Zvarich S.I., Protsak V.P., Levchuk S.E. (1999) Kinetics of fuel particle weathering and ^{90}Sr mobility in the Chernobyl 30-km exclusion zone. *Health Physics*, 1999, vol.76, N.3, p.251-259.
- Kelley, J.M.; Bond, L.A.; Beasley, T.M. (1999) Global Distribution of Pu Isotopes and ^{237}Np . *Science of the Total Environment* 237/238, 483-500.
- Kendall G.M., Kennedy B.W., Greenhalgh J.R., Adams N., Fell T.P. (1987). Committed Doses to Selected Organs and Committed Effective Doses from Intakes of Radionuclides, *Raport NRPB-GS7*, Chilton.
- Kern W. (1960). Über die radioactiven Partikel in der Spaltproduktaktivität der Atmosphäre, *Nukleonik*, p. 203-213.
- Kershaw P.J., Leonard K.S., McCubbin D., Aldrige J.N. (2001). Plutonium: the legacy of Sellafield, *Plutonium in the Environment*, Ed. A.Kudo, Elsevier, Amsterdam, ..., Tokyo, 2001. p. 305-328.
- Ketterer M. E., Haffer K.M., Mietelski J.W. (2002). Studies of Plutonium Isotopic Composition in Forest Soils from Poland using Alpha Spectrometry, Liquid Scintillation Spectrometry, and Inductively Coupled Plasma Mass Spectrometry, Book of Extended Abstracts of Radionuclides in Environment Conference, Monaco, 2-7.Sept. 2002.
- Kirchhoff G., Bunsen R. (1860). *Annalen der Physik und der Chemie* (Poggendorff), 110, s. 161-189.
- Komosa, A., Szymula, M., Szczypa, J. (1993). Some problems connected with determination of alpha isotopes in eastern part of Poland, *Proceedings of Austrian-Italian-Hungarian Radiation Protection Symposium "Radiation Protection in neighbouring countries in Central Europe", 28-30 April 1993, Obergurgl, Austria*, (300-303).
- Komosa, A. (1996). Study on plutonium isotopes determination in soils from region of Lublin (Poland). *The Science of the Total Environment*, **188** 59-62.
- Komosa, A. (1998). Studies of contamination of Borne-Sulinowo Region (Poland) with plutonium and heavy metals. *Polish Journal of Environmental Studies*, **7**, 89-93.
- Komosa, A. (1999a). Migration of plutonium isotopes in forest soil profiles in Lublin region (Eastern Poland). *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, **240**, 19-24.
- Komosa, A. (1999b). River sediment contamination with plutonium isotopes and heavy metals in Lublin Agglomeration. *Polish Journal of Environmental Studies*, **8**, 155-160.
- Krajewski. P., Koncepcja nowego systemu ochrony środowiska przed promieniowaniem jonizującym, *Postępy Techniki Jądrowej* Vol **43** Z.4. 2000, 21-27.
- Kubica B., Mietelski J.W., Gołaś J., Skiba S., Tomankiewicz E., Gaca P., Jasińska M., Tuteja-Krysa M. (2002). Concentration of ^{137}Cs , ^{40}K , ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$ Radionuclides and Some Heavy Metals in Soil Samples from Two Main Valleys from Tatra National Park, *Polish Journal of Environmental Studies*, vol. **11**.No. 5 (2002), 537-545.
- Kudo A. (2001). Preface. *Plutonium in the Environment*, Ed. A.Kudo, p. xii-xv, Elsevier, Amsterdam, ..., Tokyo, 2001. p.xiii-xv.
- Kudryashov V., Mironov. V, Konoplya E. (2001). The contamination of Belarus territory by transuranium elements, *Proceedings of NATO Advanced Research Workshop on Man-Made Radionuclides and Heavy Metals Wastes in Environment*, Dubna, Russia 3-6 Oct. 2000, Eds. M Frontasyeva, VP Perelygin, P Vater, NATO Science Series, IV Earth and Environmental Sciences vol. 5, Kluwer Academic Publishers 2001, p. 127-134.
- LaRosa J.J., Cooper E., Ghods-Esfahani A., Jansta V., Makarewicz M., Shawky S., Vajda N. (1992). Radiochemical methods used by the IAEA's Laboratories at Seibersdorf for the determination of ^{90}Sr , ^{144}Ce and Pu radionuclides in the environment samples collected for the International Chernobyl Project, *J. Environ. Radioactiv.* **17**, 183-209.

- Lieth H., Markert B. (1985) Concentration Cadaster of Chemical Elements in Contrasting Ecosystems, *Naturwissenschaften* **72**, p. 322-324.
- Liljenzin J.O., Skällberg M., Persson G., Ingemansson T., Aronsson P.O. (1988), Analysis of the Fallout in Sweden from Chernobyl; *Radiochimica Acta* **43**, p.1-25
- Lindner G., Drissner J., Herrmann T., Hund M., Zech W., Zibold G., Zimmerer R. (1994). Seasonal and Regional Variation in the Transfer of Cesium Radionuclides from Soil to Roedeer and Plants in a Prealpine Forest. *The Science of the Total Environment*, **157**
- Liniecki J., Zagadnienia metabolizmu i skażeń ^{90}Sr , Warszawa, 1966 .
- Mahara Y., Kudo A., *Appl. Rad. and Isot.*, **46** (1995), p. 1191-1202
- Mayer-Kuckuk T. (1983). Fizyka jądrowa, PWN, Warszawa.
- McInroy J.F, Kathren R.L, Swint M.J. (1989). Distrubution of plutonium and americium in whole bodies donated to the United States transuranium registry, *Radiation Protection Dosimetry*, vol. **26** p. 151-158.
- Melin J., Wallberg L., Suomela J. (1994).Distribution and retention of cesium and strontium in Swedish boreal forest ecosystems, *The Science of the Total Environmen*, **157** p. 93-105.
- Mietelski J.W., Broda R., Sieniawski J. (1988) Long Lived Isotopes in the Chernobyl Radioactive Cloud at Cracow, *J. of Radioanal. and Nuclear Chemistry, Letters* **127** vol.5 (1988), 367-378.
- Mietelski J.W.;(1989) P.I.M.P. - konwersacyjny program analiz widm promieniowana gamma dla komputera PC . *Report INP No 1435/S*, Kraków
- Mietelski J.W., LaRosa J.J., A.Ghods (1993) Results of ^{90}Sr , and ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$, ^{241}Am , measurements in some samples of mushrooms and forest soil from Poland, *Journal of Radoanal. and Nucl. Chem. Articles*. **170** (1) 1993, p. 243-258.
- Mietelski J.W, Jasińska M., Kubica B.,Kozak K., Macharski P. (1994 a), Radioactive Contamination of Polish Mushrooms, *The Science of the Total Environment*, **157** p.217-226
- Mietelski J.W., Macharski P., Jasińska M., Broda R. (1994 b), Radioactive contamination of forests in Poland, *Biolo. Trace Elem. Res.*, **43-45**, p. 715-723.
- Mietelski J.W. (1994) Skażenia promieniotwórcze lasów Polski, Praca doktorska, IFJ, Kraków 1994.
- Mietelski J.W., Wąs B. (1995) Plutonium from Chernobyl in Poland, *Applied Radiation and Isotopes*, **46** (11), p. 1203-1211.
- Mietelski J.W., Jasińska M. (1996). Radiocesium in bilberries from Poland: comparison with data for mushroom samples, *Journal of Radioecology*, **4**, p. 15-25
- Mietelski J.W., Kozik R.(1996) Plutonium and other radionuclides in some lichens samples from Poland, *Journal of Radioecology*. **4**, (2) p. 7 – 17.
- Mietelski J.W., Jasińska M., Kozak K., Ochab E. (1996 a) The method of measurements used in the investigation of radioactive contamination of forests in Poland. *Applied Radiation and Isotopes*, **47**, 1089-1095.
- Mietelski JW, M.Jasińska, K.Kozak, J.Barszcz, J.Greszta (1996 b), Dynamika skażeń promieniotwórczych izotopami cezu w wybranych elementach ekosystemów leśnych Karpat i Sudetów, *SYLWAN*, **140**, Nr. 6 (1996), s. 23-41.
- Mietelski J.W., Vajda N.(1997) Chernobyl ^{90}Sr in bilberries from Poland. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, **222**, 183.
- Mietelski J.W., Wąs B. (1997) Americium, curium and rare earths radionuclides in forest litter samples from Poland. *Applied Radiation and Isotopes*, **48**, 705
- Mietelski, J.W. (1998). Transuranic elements and Sr-90 in samples from forests of Poland, a review. *Nukleonika*, **43** (4), p. 449-458.
- Mietelski, J.W., Dorda, J., Wąs, B. (1999). Pu-241 in samples of forest soil from Poland, *Applied Radiation and Isotopes*, vol. **51**, p .435-447.
- Mietelski J. W., Męczyński W. (2000). Application of a low-background gamma-ray spectrometer to the determination of ^{90}Sr ; *Applied Radiation and Isotopes* **53** No. 1-2, (2000), p. 121-126
- Mietelski, J. W., Gaca, P., Jasińska, M. (2000). Plutonium and other alpha-emitters in bones of wild, herbivorous animals from north-eastern Poland. *Appl. Rad. and Isot.*, **53** no 1-2 p. 251-257.
- Mietelski J.W., Gaca P., Olech M. A. (2000) Radioactive contamination of lichens and mosses collected in South Shetlands and Antarctic Peninsula, *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 245 No.3, (2000), p.527-535

- Mietelski J.W., (2001 a). Plutonium in the environment of Poland (a review), w A.Kudo (Ed.) "Plutonium in the Environment" – Elsevier, 2001, p. 401-420.
- Mietelski J.W. (2001 b), On a pure instrumental method of Sr-90 determination in bone samples, *J.Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, vol. **251** No. 3 , 551-553.
- Mietelski, J.W., P. Gaca, P., Zagrodzki, P., Jasińska M., Zalewski, M., Tomczak, M., Vajda N., Dutkiewicz E.M. (2001 a). ⁹⁰Sr and Stable Strontium in Bones of Wild, Herbivorous Animals from Poland. *J. of Radioanal. and Nucl. Chem.* , vol. **247**, 2001, 363-370
- Mietelski J.W., Gaca P., Tomczak M., Zalewski M., Dutkiewicz E.M., Szegłowski Z., Jasińska M., Zagrodzki P., Kozak K.(2001 b), Radionuclides in bones of wild, herbivorous animals from north-eastern Poland, Proceedings NATO Advanced Research Workshop on Man-Made Radionuclides and Heavy Metals Wastes in Environment, Dubna, Russia 3-6 Oct. 2000, Eds. M Frontasyeva, VP Perelygin, P Vater, NATO Science Series, IV Earth and Environmental Sciences vol. **5**, Kluwer Academic Publishers 2001, str. 113-120
- Mietelski J.W., Baeza A.S., Guillen J., Buzinny M., Tsigankov N., Gaca P., Jasińska M., Tomankiewicz E. (2002) Plutonium and other alpha emitters in mushrooms from Poland, Spain and Ukraine, *Applied Radiation and Isotopes*, **56**
- Mietelski J.W.(2002), Radionuclides from Chernobyl hot particles in the environment of North-Eastern Poland – A leaching Experiment, Ed. F.Brechignac, Proceedings of the ECORAD 2001 conference, 1-7 September 2001, Aix-en-Provence, *Radioprotection*, vol. **37** (2002), C1 (special), 249 -254.
- Mietelski J.W., Gaca P. (2002), Measurements of ⁹⁰Sr and ²⁴¹Pu in Various Matrix Samples, Proceedings of the LSC 2001 conference, 7-11 May 2001, Karlsruhe, in print in *RADIOCARBON*
- Mietelski J.W. (2002 b). Uranium and thorium in construction materials of ICARUS neutrino detector, ICARUS TM02/07, CERN.
- Mietelski J.W., Kitowski I., Gaca P., Tomankiewicz E. (2003 a). Elevated plutonium and americium content in skulls of small mammals, *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 256 No3.
- Mietelski J.W., Szwalko P., Tomankiewicz E., Gaca P., Grabowska S. (2003 b), Geotrupine beetles (Coleoptera: Scarabaeoidea) as bio-monitors of man-made radioactivity, *Journal of Environmental Monitoring*. 5 (2), p.296-301.
- Mietelski J.W., Szwalko P., Tomankiewicz E., P.Gaca, S. Małek, J.Barszcz, S.Grabowska, ¹³⁷Cs, ⁴⁰K, ⁹⁰Sr, ^{238, 239+240}Pu, ²⁴¹Am and ^{243+ 244}Cm in forest litter and their transfer to some species of insects and plants in boreal forests - three cases study (2003 c). Przesłane do *Applied Radiation and Isotopes*
- Mironov V., Matusевич J., Kudrashov V., (2001). Destruction of Fuel Particles from the Chernobyl Fall-out on the Territory of Bealarus, Proceedings of NATO Advanced Research Workshop on Man-Made Radionuclides and Heavy Metals Wastes in Environment, Dubna, Russia 3-6 Oct. 2000, Eds. M Frontasyeva, VP Perelygin, P Vater, NATO Science Series, IV Earth and Environmental Sciences vol. 5, Kluwer Academic Publishers 2001, p. 55-60.
- Moreno J., LaRosa J.J., Danesi P.R., Burns K., DeRegge P., Vajda N., Sinojmeri M. (1998) Determination of ²⁴¹Pu by liquid scintillation counting in the combined procedure for Pu radionuclides, ²⁴¹Am and ⁹⁰Sr Analyses in Environmental Samples. *Radioactivity and Radiochemistry* **9**, 35.
- Muramatsu, Y.; Rühm, W.; Yoshida, S.; Tagami, K.; Uchida, S.; Wirth, E. (2000) Concentrations of ²³⁹Pu and ²⁴⁰Pu and their Isotopic Ratios Determined by ICP-MS in Soils Collected from the Chernobyl 30-km Zone. *Environmental Science and Technology* 34, 2913-2917.
- Myasoedov B.F., Pavlotskaya F.I., (1989) Measurements of Radioactive Nuclides in the Environment. *Analyst*, vol. **114**, p.255-263
- Niewiadomski T., Ryba E. (1986). Sprawozdanie z badań niektórych radiacyjnych skutków katastrofy czernobylskiej w SPOpP; Raport IFJ No 1329/B, Kraków
- Newton D., Dmitriev S.N. (2001) Tracking the behaviour of plutonium in man; "Radionuclides and Heavy Metals in Environment", Proceedings NATO Advanced Research Workshop on Man-Made Radionuclides and Heavy Metals Wastes in Environment, Dubna, Russia 3-6 Oct 2000), Eds. M Frontasyeva, VP Perelygin, P Vater, NATO Science Series, IV Earth and Environmental Sciences vol. 5, Kluwer Academic Publishers 2001, p. 1-9.
- Newton I.(1704), *Optica*, Londyn.

- Núñez-Lagos R., Virto A (1996). Shielding and background reduction, *Applied Radiation and Isotopes*, **47** No9/10 p. 1011-1021.
- Oikari T., Kajola H., Nurmi I. and Kaihola L. (1987) Simultaneous counting of low alpha- and beta-particle activities with liquid scintillation spectrometry and pulse-shape analysis. *International Journal of Applied Radiation and Isotopes* **38A**, 875.
- Olszewski J.L.. Catches of *Carabidae* (*Coleoptera*) and *Geotrupes stercorosus* (Sc.) (*Scarabaeidae*, *Coleoptera*) in the Białowieża National Park, and the ecoclimatic parameters. *Ekol. pol.*, **27** (3) 1979, 437–447.
- Olguin M.T., Segovia N., Carrillo J., Ordoñez E., Iturbe J.L., Bulbuljan S. (1990). ^{222}Rn content and $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ activity ratio in groundwaters, *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, Articles*, **141** No. 1, p. 17-23.
- Osvath I. (1991) Gamma emitters in atmospheric deposition sampled in Romania during May-June 1986, *Proceedings of the International Symposium on Post-Chernobyl Environmental Studies in East European Countries, Kazimierz nad Wisłą 1990*, p. 113-117, UMCS press, Lublin .
- PAA (Zespół Prezesa Państwowej Agencji Atomistyki) d/s EJ Żarnowiec: Raport w sprawie następstw katastrofy w Czarnobylu (wraz z załącznikami), Warszawa, 1991.
- Paatero J., Jaakkola T., Reponen A. (1994), Determination of the ^{241}Pu deposition in Finland after the Chernobyl Accident. *Radiochimica Acta* **64**, 139.
- Paatero J., Jaakkola T. (1998) Transfer of plutonium, americium and curium from fallout into reindeer after the Chernobyl accident, *Boreal Environmental Research* **3**, 181.
- Parus J.L., Raab W., Radoszewski T. (1993) Liquid scintillation counting of plutonium and/or americium concentrations. *Liquid Scintillation Spectrometry 1992*, ed. J.E.Noakes, F.Schönhofer, H.A.Polach, *Radiocarbon* 1993, 233.
- Pavlotskaya F.I. and Myasoedov B.F. (1991). Plutonij v Potchviach (Plutonium in Soils) *Priroda* **5**, 57-61
- Peppard D.F., Studier M.H., Gergel M.V., Mason G.V., Sullivan J.C., Mech J.F (1951), Isolation of microgram quantities of naturally occurring plutonium and examination of its isotopic composition, *J. American Chemical Society*, **73**, p. 2529-2531.
- Pieńkowski L., Jastrzębski J., Tys J., Batsch T., Jaracz P., Kurcewicz W., Mirowski S., Szeplińska G., Szepliński Z., Szweryn B., Wilhelmi Z., Józefowicz E.T. (1987). Isotopic Composition of the Radioactive Fallout in Eastern Poland after the Chernobyl Accident; *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, Letters* **117** (1987) 6; p 379-411
- Pietruszewski A. Bojanowski R. (1990). Plutonium in the Air at Warsaw after Chernobyl Accident. In: *Proceedings of the International Symposium on Post-Chernobyl Environmental Radioactivity Studies in East European Countries, Kazimierz nad Wisłą, 17-19 Sept.1990*, 118-126, Lublin, UMCS Press.
- Pietrzak-Flis Z., Krajewski P., Radwan I., Muramatsu Y. (2003). Retrospective evaluation of ^{131}I deposition density and thyroid dose in Poland after the Chernobyl accident, *Health Physics* **84**(6): 698-708.
- Pietrzak-Flis Z., Orzechowska G., (1993). Plutonium in Daily Diet in Poland after the Chernobyl Accident *Health Physics*, **65** (5), 489-492.
- Pietrzak-Flis Z., Radwan I., Rosiak L., Wirth E. (1996). Migration of ^{137}Cs in soil and its transfer to mushrooms and vascular plants in mixed forest, *The Science of the Total Environment*, **186**, 243-256.
- Roentgen W.C.(1896). On a New Kind of Rays, - referat wygłoszony w 1895 w Würzburgu, publikowany w *Nature* **53**, s. 274.
- Ronneau C., Cara J., Apres D. (1987). The deposition of radionuclides from Chernobyl to a forest in Belgium, *Atmospheric Environment*, **21** p. 1467-1468.
- Roos P., Holm E., Persson R.B.R., Aarkrog A., Nielsen S.P. (1993). Deposition of ^{210}Pb , ^{137}Cs , $^{239+240}\text{Pu}$, ^{238}Pu and ^{241}Am in the Antarctic Peninsula Area, *J. Environmental Radioactivity*, **24**, p. 235
- Rose H.J., Jones G.A. (1984), *Nature*, **307**, 245.
- Rudhard J., Schell B., Lindner G.(1992). Size Distribution of Hot Particles in the Chernobyl Fallout. To be published within *Proceedings of International Symposium on Radioecology: Chemical Speciation - Hot Particle*, Znojmo, Czech Republic, 12-16.Oct.1992.

- Rutherford E., (1899) Uranium Radiation and the Electrical Conduction Produced by it, *Philosophical Magazine*, ser.5, XLVII, p. 109-163.
- Salbu B., (2001). Actinides associated with particles, Plutonium in the Environment, Ed. A.Kudo, p. 121-138, Elsevier, Amsterdam, ..., Tokyo, 2001.
- Sandalls F.J., Segal M.G., Victorova N.N. (1993), Hot particles from Chernobyl; a review. *Journal of Environmental Radioactivity*, **18**, p. 5-22.
- Schönhofer, F., Tataruch, F., Friedrich, M. (1994). Strontium-90 in antlers of red deer: an indicator of environmental contamination of ^{90}Sr , *The Science of the Total Environment*, 157 p. 323-352.
- Schubert P., Behrend U., (1987), Investigations of radioactive particles from the Chernobyl fallout, *Radiochimica Acta*, **41**, p. 149-155.
- Seaborg G.T., Mc Millan E.M., Kennedy J.W., Wahl A.C. (1946). Radioactive element 94 from deuterons on uranium. *Phys. Rev.* **69**, p. 366-367.
- Seaborg G.T., Perlman M.L. (1948) Search for elements 93 and 94 in nature. Presence of $^{94}\text{Zr}^{239}$ in pitchblende. *J.American Chemical Society*, **70**, p. 1571-1573.
- Seaward M.R.D., Heslop J.A, Green D., Bylińska E.A.; Recent levels of radionuclides in lichens from Southwest Poland with particular reference to ^{134}Cs and ^{137}Cs , *J. Environ. Radioactiv.* **7** (1988), p. 123-129
- Sill C.W. (1987). Precipitation of actinides as fluorides or hydroxides for high resolution alpha spectrometry. *Nuclear Chem. Waste Mgmt.* **7**, 201-215.
- Skłodowska-Curie M. (1898) *Comptes Rendus* **126**, 1101-3.
- Skwarzec B., Bojanowski R. (1992). Distribution of Plutonium in Selected Components of the Baltic Ecosystems within the Polish Economic Zone. *J.Environmental Radioactivity* **15** 249-263.
- Skwarzec B., (1995). Polon, uran i pluton w ekosystemie południowego Bałtyku . *Rozprawy i monografie IOPAN* 6/1995.
- Skwarzec, B. (1997a). Polonium, uranium and plutonium in the southern Baltic Sea. *Ambio*, **26**, 113-117.
- Skwarzec, B. (1997b). Radiochemical methods for the determination of polonium, radiolead, uranium and plutonium in environmental studies. *Chem. Anal. (Warsaw)*, **42**, 107.
- Skwarzec, B. (1999). Polonium, uranium and plutonium in the Southern Baltic Ecosystem. *Czechoslovak Journal of Physics*, **49. Supplement 1**, 461-466.
- Small T.D., Warren L.A., Roden E.E., Ferris F.G (1999). Sorption of strontium by bacteria, Fe (III) oxide and bacteria-Fe(III) oxide composites, *Environmental Science and Technology*, **33** p. 4465-4470.
- Sokolik G.A., Ivanova, T.G. Leinova S.L., Ovsiankova S.V., Kimlenko I.M. (2001 a). Migration ability of radionuclides in soil-vegetation cover of Belarus after Chernobyl accident. *Environment International*, **26**, p. 183-187.
- Sokolik G.A., Ovsiankova S.V., Kimlenko I.M. (2001 b). Organic soil components influence on Plutonium and Americium mobility. *Doklady of the National Academy of Science of Bielorussia*, **45**, p. 107-111.
- Sokolik G.A., Ovsiankova S.V., Kimlenko I.M. (2002). Organic components and plutonium or americium. State in soil and soil solutions. *Doklady of the National Academy of Science of Bielorussia*, **46**, p. 107-111.
- Stamoulis, K.C., Assimakopoulos, P.A., Ioannides, K.G., Johnson, E., Soucacos, P.N, (1999). Strontium-90 concentration measured in human bones and teeth in Greece, *The Science of the Total Environment* **239**, p. 165-182.
- Starzyk J. R., Szwalko P. The effect of the control treatments against *Lymantria monacha* (L.) using Dimilin and Foray on the population of epigeic beetles from the genus *Carabus* L. (*Carabidae*) and *Geotrupes* Latr. (*Scarabaeidae*). Integrated Management of Forest *Lymantriidae*. Proceedings of International Conference, March 27–29, 1996, Warsaw–Sekocin (Poland), 1996, 137–148.
- Strand, P., Brown, J. E., Larsson, C., -M (2000). Framework for the protection of the environment from ionizing radiation, *Radiation Protection Dosimetry*, Vol. 92, Nos. 1-3, p 169-175 (2000)
- Strandberg, M., Strandgaard, H. (1995). ^{90}Sr in antlers and bone of a Danish Roe Deer Population, *Journal of Environmental Radioactivity*, **27** p. 65-74
- Strebl F., Gerzabek M.H., Karg V. (1995). Soil-Plant Transfer Factors in Forest Ecosystems, Report OEFZS-4746, Seibersdorf, 1995.

- Strebl F., Gerzabek M.H., Bossew P., Kienzl K. (1999). Distribution of radiocesium in an Austrian forest stand, *The Science of the Total Environment* **226**, 75-83.
- Strzałkowski A. (1979). Wstęp do fizyki jądra atomowego, PWN, Warszawa.
- Strzelecki R., Wołkowicz S., Szewczyk J., Lewandowski P. (1993): Mapa stężeń cezu w Polsce, Radiologiczne mapy Polski, cz. I., Państwowy Instytut Geologiczny, Warszawa, 1993.
- Suplińska, M.M., Grzybowska, D. (1998). ^{137}Cs i pluton w osadach dennych Morza Bałtyckiego w latach 1994-1996 *Book of Abstract*, "Krajowa Konferencja Radiochemii i Chemii Jadrowej, Kazimierz Dolny, 18-21 May 1998, IChTJ, Warszawa, 51.
- Suplińska, M.M. (1992). Studies on plutonium concentration in the sea bottom sediments. *Operational and research activities of Central Laboratory for radiological Protection in the years 1990-1991*, CLOR, Warszawa, 68-70.
- Swift D.J., R.J. Pentreath (1988), The Accumulation of Plutonium by the Edible Winkle (*Littorina littorea* L.), *J.Environmental Radioactivity* **7**, p. 29-48
- Szwalko P. Chrząszcze żukowate (*Coleoptera: Scarabaeoidea*) Puszczy Białowieskiej w aspekcie dotychczasowych wyników badań monitoringowych na terenie północno-wschodniej Polski. [Scarabaeoidea (Coleoptera) of the Białowieża Primeval Forest in the aspect of the results obtained so far in the monitoring study in NE Poland]. *Prace Inst. Bad. Leśn., Ser. A*, 794: 1995, 107-128.
- Szwalko P. Poświętniki (*Coleoptera: Scarabaeoidea*) w biocenozach leśnych Puszczy Niepołomickiej. [Scarabaeoidea (Coleoptera) in forest biocenosis of Niepołomice Primeval Forest (SE Poland)]. Doctoral thesis, Agricultural University of Krakow, 2001, 198+112 pp.
- Tamponnet C., Plassard C. Parekh N., Sanchez A. (2001) Impact of micro-organisms on the fate of radionuclides in rhizospheric soils; w: *Radioactive Pollutants – Impact on the Environment*, eds. Brechignac F., Howard B., EDP Sciences, Les Ulis, 2001. p. 175-185.
- Taylor, D. M. (1995). Environmental plutonium in humans, *Applied Radiation and Isotopes* **46**, p. 1245-1252.
- Taylor D.M. (2001). Environmental plutonium- creation of the universe to twenty-first century mankind. *Plutonium in the Environment*, Ed. A.Kudo, p. 1-14, Elsevier, Amsterdam, ..., Tokyo, 2001.
- Texier A.C., Andres Y., Illemassene M., Le Cloirec P. (2000). Characterisation of Lanthanide ions binding sites in the cell wall of *Pseudomonas aeruginosa*. *Environmental Science and Technology*, **34** p. 610-615.
- Tiller, B.L., Poston, T.M. (2000). Mule deer antlers as biomonitors of strontium-90 on the Hanford site, *Journal of Environmental Radioactivity*, **47** p. 29-44
- Tolley M.R., Strachan L.F., Macaskie L.M. (1995). Lanthanum accumulation from acid solution using *Citrobacter sp.* Immobilized in a flow-through bioreactor. *J. Industrial Microbiology*, **14** p. 271-280.
- Tuominen Y., Jaakkola T. (1973); Absorption and accumulation of mineral elements and radioactive nuclides. The lichens ed. by V.Ahmadjian and M.E. Hale, New York Academic Press, 973 p. 185-223.
- UNSCEAR (1982): Ionizing Radiation Sources and Biological Effects; Raport to the General Assembly with annexes, UN. Pub.,1982, New York .
- UNSCEAR (1988): Ionizing Radiation Sources and Biological Effects; Raport to the General Assembly with annexes, UN. Pub.,1988, New York .
- UNSCEAR (1993). Ionizing Radiation Sources and Biological Effects; Raport to the General Assembly with annexes, UN. Pub.,1993, New York .
- UNSCEAR. (1996). Effects of Radiation on the Environment. United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation. Report to the General assembly, Anex 1, New York: United Nations 1996.
- Vajda N. (2001). Radioactive Particles in the Environment: Occurance, characterization, appropriate analytical techniques; Review. 1st Research Coordination Meeting of the Coordinated Research Project on "Radiochemical, Chemical and Physical Characterization of Radioactive Particles in the Environment", IAEA, Vienna, 7-11 May 2001.
- Vajda, N., Ghods-Esphahani, A., Cooper, E., Danesi, P.R. (1992). Determination of Radiostrontium in Soil Samples Using a Crown Ether, *J. Radioanal. Nucl. Chem.* **162** (2) p. 307-323.

- Valkama I., Salonoja M., Toivonen H., Lahtinen J., Pöllänen R. (1995) Transport of radioactive gases and particles from the Chernobyl accident, comparison of environmental measurements and dispersion calculations. In: Environmental impact of radioactive releases, IAEA-SM-339/69, IAEA Press, Vienna 1995, p. 57-68.
- Viktorova N.N., Demchuk V.V., Ganga E.V., Tryetyakova, Golovchen A.N. (1993). Nondestructive control of Chernobyl hot particles behaviour and migration of radionuclides in Soil-Plant system, Nucl.Tracks Radiat. Measurements, **22** (1-4) p. 885-888.
- Wilken R.D., Diehl R., (1987) Strontium-90 in environmental samples from northern Germany before and after the Chernobyl accident, *Radiochimica Acta* **41** p. 157-162
- Zhang Y, Zhao X., Wei L., Lin Z., Wang, D. (1996). Complex formation of americium III with humic acid: Book of Extended Abstract of 4th International Conference on Nuclear and Radiochemistry, St. Malo 8-13. IX 1996, Vol. II, p. EP-63, Eds J.David and J.C.Krupa.
- Zagrodzki P., Mietelski J.W., Krośniak M., Petelenz B. (1994), Accumulation of Cesium and Radiocesium in Forest Litter in Selected Regions of Poland and its Influence on Litter-to-Mushrooms Transfer Factor, *Biological Trace Elements Research*, **43-45** p. 273-279.
- Zmysłowski A., (1991) Pluton (powstanie, właściwości promieniotwórcze i radiotoksyczne), *Bezpieczeństwo Jądrowe i Ochrona Radiologiczna*, Nr. 7/1991, p. 3-7.
- Żarnowiecki K. (1988) Analiza skażeń promieniotwórczych i zagrożenia radiologicznego w Polsce po awarii elektrowni jądrowej w Czarnobylu; Raport CLOR Nr 120/D, Warszawa 1988.

ANEKS 1.

Programy analiz widm promieniowania gamma (P.I.M.P) i alfa (ALF)

Widma promieniowania gamma zbierane podczas opisanych w pracy badań analizowane były za pomocą programu P.I.M.P. Program ten, napisany w języku MS Fortran z wykorzystaniem pakietu graficznego MetaWindows, pracuje w środowisku DOS. Został opisany szczegółowo w raporcie IFJ (Mietelski, 1989). Program umożliwia prace w trybach automatycznym i nieautomatycznym. W trybie automatycznym znajdowane są linie widmowe i obliczane są ich powierzchnie (wraz z oceną niepewności). Tryb nieautomatyczny pozwala korygować wyniki procedury automatycznej (tj. znajdowanie linii i odcinanie tła po liniami widmowymi). W trybie nieautomatycznym możliwe jest również dekonwolucja częściowo pokrywających się linii widmowych poprzez dopasowywanie metodą najmniejszych kwadratów do dziesięciu funkcji Gaussa opisujących te linie oraz wielomianu (stopnia 1,2 lub 3) lokalnie w pobliżu analizowanych linii) opisującego przebieg ciągłej składowej tła spektrometru. Wczesna wersja programu P.I.M.P. była rozpowszechniana przez firmę Inter-Polon jako wyposażenie dodatkowe analizatora wielokanałowego Polon-Tristan 1024.

Program ALF jest modyfikacją programu analiz widm promieniowania gamma P.I.M.P. (Mietelski, 1989) i jak jego poprzednik napisany jest w języku Fortran z zastosowaniem grafiki MetaWindows. Powstał w roku 1993, a udoskonalany był do 1998. Podstawową różnicą programów jest rezygnacja z procedury automatycznego wyszukiwania i integrowania linii widmowych oraz opis analityczny linii widmowych stosowanych w procedurze rozdziału (dekonwolucji) częściowo pokrywających się linii widmowych. Linie te zamiast za pomocą funkcji Gaussa przybliżane są za pomocą funkcji postaci:

$$N(x) = \alpha \cdot \exp\left(\frac{-(x-M)^2}{\beta \{|x-M| - (x-M)\} + \gamma}\right) \quad \{A-1\}$$

gdzie:

$N(x)$ – liczba zliczeń w kanale x -tym, α - amplituda dla maksimum funkcji (t.j. w kanale M -tym), M - położenie maksimum, β , γ - parametry kształtu linii widmowej dla danego źródła.

Zauważmy, że funkcja dana powyższym równaniem dla $x > M$ przechodzi w funkcje Gaussa, podczas gdy w dostatecznie dużej odległości od M dla $x < M$ funkcja przechodzi w zwykłą funkcję wykładniczą.

W dopasowaniu przeprowadzonym dla pojedynczej linii widmowej ustala się wartości parametrów β i γ dla danego źródła poprzez dopasowane metodą najmniejszych kwadratów w kolejnych 10 iteracjach liniowego przybliżenia rozwinięcia w szereg funkcji danej równaniem {A-1}, zgodnie z wyrażeniem:

$$N(x, \alpha, M, \gamma, \beta) = N(x, \alpha_o, M_o, \gamma_o, \beta_o) + \frac{\partial N}{\partial \alpha} d\alpha + \frac{\partial N}{\partial M} dM + \frac{\partial N}{\partial \beta} d\beta + \frac{\partial N}{\partial \gamma} d\gamma \quad \{A-2\}$$

gdzie zerowe indeksy oznaczają początkowe wartości parametrów, lub później, wartości otrzymane w poprzedniej iteracji. Formalnie parametry traktowane są jak zmienne.

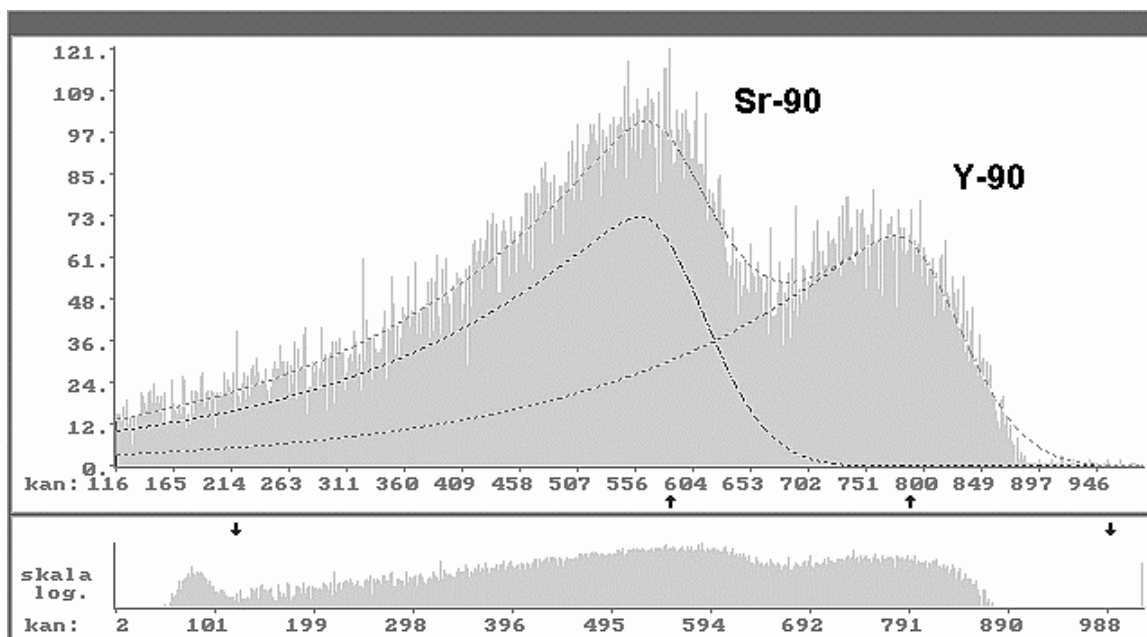
Następnie dopasowuje się (mając jako swobodne parametry tylko amplitudy α_i i M_i - położenia maksimum kolejnych pików w multiplecie) w kolejnych 10 iteracjach funkcję $G(x, \bar{\alpha}, \bar{M})$ daną równaniem {A-3}, stanowiącą przybliżenie liniowe rozwinięcia w szereg sumy funkcji $N_i(x, \alpha_i, M_i)$, (tj. przy zaniedbaniu członów z drugimi i wyższymi rzędami pochodnymi cząstkowymi po parametrach α_i i M_i) zgodnie ze wzorem:

$$G(x, \bar{\alpha}, \bar{M}) = \sum_{i=1}^k N_i(x, \alpha_i, M_i) = \sum_{i=1}^k N_i(x, A_{io}, M_{oi}) + \sum_{i=1}^k \frac{\partial N_i}{\partial A_i} dA_i + \sum_{i=1}^k \frac{\partial N_i}{\partial M_i} dM_i \quad \{A-3\}$$

gdzie zerowe indeksy oznaczają j.w., parametry zapisane są formalnie jako składowe k - wymiarowej zmiennej wektorowej (liczba wymiarów to liczba rozdzielanych linii widmowych).

Iteracje przerywane są automatycznie, jeśli nie są zbieżne, tj. gdy wartości bezwzględne przyrostów są większe od pewnych zadanych wielkości. Wynik dopasowania przedstawiany jest graficznie na ekranie jako suma dopasowywanych funkcji, oraz same te funkcje. Po akceptacji przez operatora pole powierzchni linii widmowej oblicza się całkując numerycznie otrzymane funkcje $N(x)$. Algorytm metody najmniejszych kwadratów jest, jak i w przypadku programu PIMP, algorytmem krakowianowym.

Program stosowany jest od roku 1993 do obliczania pól powierzchni linii widmowych dla widm promieniowania alfa, przedstawionych na wielu rysunkach w tej pracy. Co może zaskakiwać, okazał się również przydatny do rozdzielania widm promieniowania beta uzyskiwanych za pomocą spektrometru ciekłoscyntylacyjnego, przy logarytmicznej skali odciętych (kanałów) w widmach, co jest zilustrowane na rys. A1.



Rys. A1. Ilustracja próby zastosowania programu ALF do rozdzielania składowych widm promieniowania beta ^{90}Sr będącego w równowadze z ^{90}Y otrzymanych za pomocą spektrometru Wallac 1414-003 Guardian. Aktywność ^{90}Sr wynosiła 5 Bq. Otrzymane w wyniku całkowania pola powierzchni są sobie w granicach błędów 3% [(Mietelski i Gaca, 2002)].

ANEKS 2

Stosowane procedury radiochemiczne

Osoba przeprowadzająca analizy ma w trakcie przebywania w pokoju laboratoryjnym maskę ochronną na twarzy, rękawiczki jednorazowe na rękach i fartuch. Rękawiczki bezwzględnie powinny być zdjęte przy opuszczaniu pomieszczenia. Wszystkie odczynniki cz.d.a., roztwory z dejonizowaną lub bidestylowaną wodą. Praca pod wyciągiem włączonym całodobowo!

I. Mineralizacja próbki.

I a. Próbki gleby, osadów dennych, ściółki leśnej, roślin, owadów, grzybów, zwierzęcych tkanek miękkich itp [La Rosa i inni, 1992]

- M1. Odważamy nie więcej niż 10 g spopielonego w piecu muflowym w 600 C (przez min. 6h) materiału próbki umieszczamy w teflonowej zlewce 250 ml. Na podstawie masy suchej i spopielonej wylicza się jakiej suchej masie odpowiada masa wzięta do analizy.
-dodajemy 10 ml 1M HNO₃ i mieszamy
-dodajemy, zmieniając końcówki mikropipety, po 50 µl lub 25µl znaczników (tj. rzędu 20-10 mBq): ²³⁶Pu (i innych, zależnie od planowanego zakresu analizy, np. ²⁴³Am, ¹⁴⁸Gd, ²³²U itp).
- M2. BARDZO OSTROŻNIE dodajemy 70ml 40% HF (lub w przypadku próbek o niskiej zawartości krzemionki 50 ml)
- M3. Gotujemy pod przykryciem na maszynie elektrycznej ok.4 h, następnie odparowujemy (pokrywki uniesione) do pasty.
- M4. powtarzamy pkt. M2 –M3 ale dodając 30 ml 40% HF
- M5. Dodajemy i odparowujemy do pasty 3 razy pod rząd po 50 ml 65% HNO₃
- M6. Dodajemy 50 ml stężonego 12 M HCl, po ustaniu pienienia się dodajemy 2g H₃BO₃ i odparowujemy. Jeśli widać czarny osad to dodajemy (mieszając na mieszadle magnetycznym) BARDZO OSTROŻNIE (po kropli) do 10 ml H₂O₂ lub do 5 kropel HClO₄. Odparowujemy do pół-sucha.
- M8. Dodajemy 50 ml 65% HNO₃ płuczając ścianki. Odparowujemy do 10 ml.
- M9. Do ciepłego dodajemy 100 ml 0.1 M HNO₃, doprowadzamy do wrzenia i studzimy.
- M10. Zimy roztwór przepuszczamy przez filtr bibułowy wolnego sączenia do szklanej zlewki 250 ml. Biorąc pod uwagę całą procedurę mineralizacji nie rozpuszczony osad mogą stanowić głównie minerały cyrkonu (widoczne ziarna) oraz tlenek tytanu (biały drobny pył).

Ib. Mineralizacja i wstępne zateżenie radionuklidów w próbkach kości (również muszli skorupiaków).

- K1. Odważone nie więcej niż 100 g spopielonej w 600 °C (6 h) materiału próbki umieszcza się w 500 ml zlewce szklanej. Na podstawie pomiaru masy suchej i spopielonej wylicza się jakiej suchej masie odpowiada masa wzięta do analizy.
-dodajemy 100 ml 65% HNO₃ i mieszamy
-dodajemy, zmieniając końcówki mikropipety, po 50 µl lub 25µl znaczników (tj. rzędu 20-10 mBq): ²³⁶Pu (i innych, zależnie od planowanego zakresu analizy, np. ²⁴³Am, ¹⁴⁸Gd, ²³²U itp).
- K2. Gotujemy pod przykryciem na maszynie elektrycznej ok.4 h, następnie odparowujemy (pokrywki uniesione) do ok. 20-30 ml.
- K3. Dodajemy 150 ml wody i 50 ml kwasu szczawowego, ustalamy amoniakiem pH = 3 (dla oznaczeń plutonu, ameryku) lub pH = 6 - wytrąca się osad szczawianów, z którym współstrącają się poszukiwane radionuklidy.
- K4. Osad odwirowujemy przy 3000 obr/min (max. 38 G), suszymy i spopielamy w piecu muflowym w 450 °C.
- K5. Spopielone pozostałości szczawianów rozpuszczamy w 50 ml 65% HNO₃ z dodatkiem kilku ml HCl. Odparowujemy do sucha.
- K6. Ponownie rozpuszczamy w 50 ml 65% HNO₃, odparowujemy do 10 ml, dodajemy 100 ml wody, doprowadzamy do wrzenia i studzimy.
- K7. Zimy roztwór przepuszczamy przez filtr bibułowy wolnego sączenia do szklanej zlewki 250 ml.

II. Pluton i tor

Materiał wyjściowy: zmineralizowana próbka (proc. M1-M10 lub K1-K7) w ok. 100 ml 1 M HNO₃ w szklanej zlewce 250 ml.

A. Ustalenie plutonu na +4 stopniu utlenienia [LaRosa i inni, 1992].

- Pu 1. Umieszczamy w zlewkach mieszadełka magnetyczne powleczone teflonem. Sprawdzamy obecność jonów Fe⁺³ reakcją z rodankiem. Jeśli wynik negatywny dodajemy 0.5 ml roztworu FeCl₃ o stężeniu ~10 mg jonów Fe⁺³ w 1 ml.
- Pu 2. Roztwór podgrzewamy do zagotowania, na chwilę odstawiamy, mieszając - do bardzo gorącego, ale nie wrzącego - dodajemy OSTROŻNIE 1ml wodzianu hydrazyny. Gotujemy 5-15 min - hydrazyna redukuje jony Fe⁺³ do Fe⁺² .. Po 10-15 min. sprawdzamy reakcję z rodankiem.
- Pu 3. Dodajemy 30 ml 65% HNO₃ , gotujemy aż nastąpi rozkład hydrazyny (zmiana koloru na żółty i zaniknięcie tworzenia się licznych bąbli). - . Przyjmuje się, że jony żelaza powracając do Fe⁺³ redukują Pu^{+4,5,6} do Pu⁺³. Roztwór studzimy.
- Pu 4. OSTROŻNIE dodajemy 5 g NaNO₂ (płyn zielony i liczne tlenki azotu) Gotujemy aż dymy znikną i kolor z powrotem żółty. Przyjmuje się, że procedura ta stabilizuje jony Pu jako Pu⁺².
- Pu 5. Studzimy i uzupełniamy objętość roztworu, by otrzymać 150 - 200 ml 8M HNO₃.

B. Procedura chromatografii jonowymiennej.



Każda kolumna o długości 12 cm wykonana z rurki polietylenowej o średnicy wewnętrznej 4 mm, wypełniona (wysokość złoża 10 cm) anionitem DOWEX 1x8 200-400 mesh Cl⁻ (Fluka, Sigma Aldrich itp.), z porowatym teflonem zatrzymującym złożę jonitu u dołu, od góry kolumny zakończona zbiornikiem na roztwór przepuszczany przez nią - jest nim całkowicie polipropylenowa strzykawka 50 ml (typu MikroLab – Fot. 4), przepływ wymuszony jest przez obciążenie tłoka strzykawki ciężarem o masie 2-5 kg. Eleuenty odbierane są do polipropylenowych zakręcanych naczyń (tzw. moczówek 120 ml lub 150 ml). Próbka znajduje się w 8M HNO₃.

Fot. 4. Układ ciśnieniowej chromatografii jonowymiennej.

- Pu 6. Przepuszczamy 50 ml 2 M HNO₃ dla zmiany formy jonitu na azotanową.
- Pu 7. Przepuszczamy przez kolumnę 50 ml 8M HNO₃.
- Pu 8. Przepuszczamy próbkę. Odbierana frakcja zawiera większość U, cały Am, stront i ziemie rzadkie (RE) oraz praktycznie wszystkie inne jony pochodzące z rozpuszczonej matrycy. Th i Pu zatrzymują się na kolumnie. (Na kolumnie zatrzyma się też częściowo U, jeśli U jest w formie jonów U⁺⁶).
- Pu 9. Przemycamy kolumnę 15 ml 8M HNO₃. Tę frakcję łączymy z poprzednią.
- Pu 10. Przemycamy kolumnę 50 ml 10M HCl. Zebrana oddzielnie frakcja zawiera praktycznie wyłącznie Th.
- Pu 11. Frakcje torową odparowujemy do 2.5 ml, rozcieńczamy do 25 ml za pomocą wody i przenosimy do naczynia polipropylenowego jednorazowego użytku. Z frakcji tej wykonujemy alfa spektrometryczne źródło torowe metodą współstrącenia z NdF₃.

Pu 12. Wymywamy Pu z kolumny używając 25 ml roztworu: 0.1 M HF z 0.1 M HCl [Harley, 1972]. Frakcję odbieramy do polipropylenowego naczynia jednorazowego użytku. Z frakcji tej wykonujemy alfa spektrometryczne źródło plutonowe metodą współstrącenia z NdF_3 . Ewentualne domieszki uranu, wymyte w tej frakcji nie ulegają współstrąceniu, jeśli pozostaje w formie jonów U^{+6} .

III. Źródło alfa spektrometryczne współstrącane z NdF_3

(dla oznaczeń Pu, Am, Cm, Th, RE, oraz U) [Sill, 1987]

Materiał wyjściowy: 25-30 ml roztworu 1 M HCl zawierającego wydzielone radioizotopy.

- Z1. Dodajemy 50 μl roztworu NdCl_3 zawierającego 50 μg jonów Nd^{+3} i lekko mieszamy. dla próbek frakcji ziem rzadkich (RE) punkt ten opuszcza się
 - Z2. Dodajemy 5 ml 40% HF i mieszamy. W przypadku U dodajemy 0.8 g soli Mohra. Odczekujemy godzinę aż narosną mikrokryształki NdF_3 , pułapkujące w swoją sieć krystaliczną wydzielone radioizotopy.
 - Z3. Filtrujemy na lejku próżniowym poprzez sączek membranowy o średnicy zewnętrznej 25 mm i średnicy porów nie większej od 0.1 μm (stosowane sączki: 0.05 μm , 0.08 μm i 0.1 μm) otrzymaną zawiesinę (optycznie nie różniącą się od roztworu!).
 - Z5. Przemycamy naczynie po zawiesinie i lejek stosując po 2ml wody bidestylowanej – przepuszczamy ją przez sączek.
 - Z6. Przemycamy lejek z sączkiem oraz naczynie po zawiesinie 2 ml etanolu.
 - Z7. Suszymy sączek umieszczając go uprzednio w polistyrenowej szalce Petriego.
 - Z8. Przyklejamy sączek do podkładki miedzianej, ponownie suszymy (Fot. 5.).
- Przeprowadzamy pomiar na spektrometrze promieniowania alfa (i gamma w przypadku RE).



Fot. 5. Źródło NdF_3 w komorze pomiarowej spektrometru promieniowania alfa Silena.

Procedura rozpuszczenia źródła dla pomiaru LSC [Moreno i inni, 1998]

Po pomiarze na spektrometrze alfa źródło (filtr membranowy) można odkleić, i przygotować do pomiaru na spektrometrze z ciekłym scyntylatorem (LSC) np. dla oznaczeń ^{241}Pu . W tym celu:

- Z9. Filtr umieszczamy w szklanej zlewce 30 ml, dodajemy 5 ml 65% HNO_3 , 2 mg H_3BO_3 gotujemy do odparowania.
- Z10. Dodajemy 2.5 ml 65% HNO_3 , i 0.5 ml HClO_4 , odparowujemy aż znikną białe dymy, dodajemy ok. 1 ml H_2O_2 , i odparowujemy.

Jeśli zamierzamy oczyścić źródło od ewentualnych domieszek wykonujemy teraz całość procedur z punktów Pu 1 do Pu 12 zastępując wykonania współstrącenia odparowaniem do sucha wymytego roztworu.

Z11. Osad rozpuszczamy w 2.5 ml 65% HNO₃, odparowujemy do prawie sucha, rozpuszczamy w 2.5 ml 1 M HNO₃, filtrujemy i mieszamy z 10 ml koktajlu ciekłoscyntylacyjnego Wallac HiSafe 3.

IV. Stront

Procedura [Vajda i inni., 1992] poddawana była modyfikacjom w czasie trwania omawianych badań. Istnieją co najmniej trzy zasadnicze wersje (A, B i C), różniące się istotnymi szczegółami.

- A. Materiał wyjściowy: zmineralizowana i wstępnie zateżona próbka (tj. po strąceniu szczawianów i ich ponownym rozpuszczeniu: pkt. K1-K7 modyfikowane – mniejsze ilości materiału, nie dodawany żaden znacznik izotopowy), umieszczona w 30 ml 3 M HNO₃ – pomiar wydajności poprzez oznaczenie zawartości stabilnego strontu metodą AAS (atomowej spektrofotometrii absorpcyjnej). Procedura wykorzystywana w oddzielnych oznaczeniach Sr. Kolumna jonowymienna, mechanicznie identyczna ze stosowaną dla oznaczeń Pu/Th, wypełniona jest stałym ekstrahentem o nazwie handlowej Sr-Spec (Eichrom Ltd), zawierającym eter koronowy jako materiał czynny
- B. Materiał wyjściowy: 250 ml 8M HNO₃ po wydzieleniu Pu i Th, zawierającego w szczególności U i Am i cały pozostały materiał matrycowy. Procedura należy do sekwencyjnej procedury radiochemicznej, w której oznaczane są być kolejno radioizotopy pierwiastków: Th, Pu, Sr, U, RE (np. Eu, Sm, Gd) oraz Am i Cm. Na początku procedury dodajemy 5 mg stabilnego Sr jako nośnika dla ⁹⁰Sr. Kolumna jonowymienna o swobodnym przepływie wykonana z rurki polietylenowej (lub szklanej) o średnicy wewnętrznej 6 mm i długości 10 cm, od dołu zabezpieczona watą kwarcową wypełniona jest tym również Sr-Spec (Eichrom Ltd).
- C. Jak w punkcie B, tyle że dodawany jest znacznik ⁸⁵Sr zamiast nośnika stabilnego Sr.

W kolejnych przypadkach procedury różnią się nieznacznie, zgodnie z poniższym opisem:

Sr 1. Kolumnę przygotowujemy przepuszczając 50 ml HNO₃ o stężeniu identycznym ze stężeniem próbki.

Sr 2. Przepuszczamy przez kolumnę roztwór zawierający próbkę. Na kolumnie zatrzymują się Sr i Pb, pozostałe jony nie. Kolumnę płuczemy 5 ml (A) lub 15 ml (B i C) roztworu HNO₃ o stężeniu identycznym ze stężeniem próbki (odpowiednio 3 M lub 8 M).

Sr 3. Sr (i częściowo Pb) wymywamy przepuszczając 50 ml wody.

Sr 4. Oddzielamy Pb od Sr (Gaca, niepublikowane) za pomocą strącenia jodku ołowiu (w tym celu dodajemy 200 µl roztworu nośnika Pb, 0.5 ml roztworu jodku amonu, 2.5 ml stężonego kwasu octowego, grzejemy do rozpuszczenia się osadu, gwałtownie studzimy). Strącony jodek ołowiu odfiltrujemy lub odwirowujemy. Cały punkt opuszcza się przy oznaczeniach w kościach lub innych materiałach zawierających znikome ilości ²¹⁰Pb. Filtr można rozpuścić dla pomiaru LSC lub wprost mierzyć na spektrometrze promieniowania gamma z detektorem Ge planarnym.

Sr 5. Wyznaczamy wydajność wydzielenia Sr i przygotowujemy pomiar LSC.

W tym celu, w przypadku wersji procedury:

A: odbieramy 10% roztworu i wyznaczamy w nim stężenie stabilnego strontu metodą AAS. Pozostałe 90% odparowujemy do prawie sucha, rozpuszczamy w 2.5 ml 1 M HNO₃ przenosimy do plastikowego naczynka scyntylacyjnego i dodajemy 10 ml ciekłego scyntylatora Walla Hi-Safe 3, mieszamy przez wstrząsanie, odczekujemy 1 h i wykonujemy pomiar.

B: do roztworu zawierającego frakcję Sr dodajemy kwas szczawiowy i strącamy szczawian strontu przy pH=6. Po wysuszeniu ważymy osad i obliczamy wydajność. Filtr umieszczamy na dnie naczynka scyntylacyjnego, zalewamy 2.5 ml 1 M HNO₃ i rozpuszczamy osad. Następnie dodajemy 10 ml ciekłego scyntylatora Wallac Hi-Safe 3, mieszamy przez wstrząsanie, odczekujemy 1 h i wykonujemy pomiar.

C: Obliczamy z aktywności odzyskanego ⁸⁵Sr z pomiaru ciekłoscyntylacyjnego, lub w przypadku dużej aktywności ⁹⁰Sr, z dodatkowego pomiaru gamma-spektrometrycznego.

V. Uran

Materiał wyjściowy: ok. 250 ml 8M HNO₃ po wydzieleniu Pu, Th i Sr, zawierającego w szczególności U i Am i cały pozostały materiał matrycowy

- U1. Odparowujemy roztwór do ok. 50 ml, dodajemy 100 ml wody, za pomocą amoniaku (ostrożnie) ustalamy pH=9, strąca się osad m.in. wodorotlenku żelaza.
- U2. Osad odwirowujemy przy 3000 obr./min (max. 38 G).
- U3. Osad rozpuszczamy w 30 ml 10 M HCl, gotujemy i odparowujemy przez ok. 30 min, rozpuszczamy w od 50ml do 100 ml 10 M HCl.
- U4. Przygotowujemy kolumnę jonowymienną (w szklanej rurce o wysokości 12 cm, średnicy wewnętrznej 10 mm) wypełniona anionitem DOWEX 1x8 200-400 mesh, Cl⁻ (Fluka Ltd.). Przepuszczamy 50 ml 10 M HCl, następnie próbkę oraz 20 ml 10 M HCl (płukanie). Na kolumnie zatrzymują się jony U⁺⁴, U⁺⁶ i Fe⁺³. Natomiast Am, Cm i RE znajdują się w przepuszczonym roztworze.
- U5. Kolumnę wymywamy 25 ml 8 M HNO₃. Wymywa się żelazo (frakcja Fe). Odebraną frakcję odparowujemy prawie do sucha w warunkach silnie utleniających (dodajemy kilka kropeł H₂O₂) dla przeprowadzenia wszystkich ewentualnych wymytych jonów U do U⁺⁶.
- U6. Odparowaną frakcję Fe przeprowadzamy do 25 ml 1 M HCl i przygotowujemy źródło metodą współstrącania NdF₃. W tych warunkach U nie współstrąca się. Przesącz może zawierać ślady U i zachowujemy go dla dalszego wykorzystania w pkt. U8.
- U7. U wypłukujemy za pomocą 70 ml 8 M HNO₃ i następnie 80 ml wody. Obie ciecze łączymy i odparowujemy do sucha.
- U8. Odparowany osad rozpuszczamy w kilku kroplach stężonego HCl, przeprowadzamy do 25 ml 1 M HCl, łączymy z przesączem z pkt. U6 i wykonujemy źródło metodą współstrącania z NdF₃ (Z1-Z8). Szczególną uwagę należy położyć na dodanie soli Mohra (pkt. Z2) – redukuje ona U⁺⁶ do U⁺⁴, który to jon uranu współstrąca się z NdF₃.

VI. Ameryk i kiur:

[Holm, Ballestra, 1989]

Materiał wyjściowy: ok. 100 ml HCl (o ile wykonywana była procedura dla oznaczeń uranu) lub ok. 250 ml 8 M HNO₃ po oznaczeniach Pu/Th i ew. Sr. Na początku, przy mineralizacji dodany ²⁴³Am lub ¹⁴⁸Gd.

- Am 1. Odparowujemy (w zlewce 400 ml) do ok. 10 ml, dodajemy 100 ml wody, zagrzewamy.
- Am 2. Na gorąco, ciągle mieszając dodajemy od 40 do 50 ml nasyconego roztworu kwasu szczawowego (C₂H₂O₄), ustalając za pomocą amoniaku pH pomiędzy 2 a 3. Strąca się Ca, Mg, RE i resztki toru. (jeśli nie wytrąca się osad to dodajemy 1 ml nasyconego roztworu azotanu wapnia). Doprowadzamy prawie do zagotowania i odczekujemy.
- Am 3. Po wystygnięciu delikatnie dekantujemy (do ok. 50 ml), resztę odwirowujemy (od 5 do 10 min, 3000 obr/min – tj. max. 38 G), dekantujemy znad wytrąconego osadu szczawianów. W roztworze jony Fe, Ti, Al.
- Am 4. Osad odwirowany rozpuszczamy w 50 ml 65% HNO₃, gotujemy do odparowania (pozostaje kilka kropeł, ale nie do suchego osadu!).
- Am 5. Dodajemy 25 ml wody, dodajemy 5 mg Fe⁺³ (z roztworu o stężeniu 5mg/50ml).
- Am 6. Przelewamy do jednorazowego plastikowego naczynia do wirówki, ustalamy (amoniakiem) PH ~ 9 strąca się wodorotlenek Fe a z nim: RE, Am, Cm. Odwirowujemy 5 min. 3000 obr/min (<38 G). dekantujemy, dodajemy 30 ml wody i wstrząsamy (aż do rozbicia osadu), kontrolujemy pH =9, ew. dodajemy amoniak, ponownie odwirowujemy, dekantujemy (płyny zbieramy dla ew. kontroli)
- Am 7. osad rozpuszczamy w 10 ml 10 M HCl + 10 ml 14 M HNO₃, w kolejnych wypłukaniach naczynia do wirówki gotujemy, odparowujemy, pod koniec (gdy jest kilka kropli) dodajemy ok. 1 - 2 ml 65 % HNO₃, dla pewności, że HCl wyparował.
- Am 8. dolewamy do 50 ml. 8 M HNO₃ i oczyszczamy ze śladów Th (pkt. Pu 8 i Pu 9). W przesączu mamy Am, Cm, Re, Fe. Płuczemy kolumnę 8 M HNO₃ (20 ml) i dodajemy do przesączu. Th pozostaje na kolumnie.

- Am 9. Przesącz odparowujemy (ale nie spiec!).
- Am 10. Kolumnę wmywamy 50 ml 2 M HCl
- Am 11. Odparowany do kropli przesącz z pkt. Am 9 rozpuszamy w 50 ml roztworu zawierającego 1 M HNO₃ w litrze CH₃OH - 93% metanolu, [IAEA, 1989] tu nazywany roztworem A).
- Am 12. Przygotujemy kolumnę (jak w procedurze Pu/Th) z DOWEX 1x8 200-400 mesh, Cl⁻, przepuszczamy 100 ml "roztworu A"
- Am 13. Przepuszczamy próbkę (50 ml) i płuczemy następnym 25 ml "roztworu A"; w przesączu: Fe, na kolumnie pozostają Am, Cm, RE.
- Am 14. Wyplukujemy RE za pomocą 80 ml 0.1 M HCl + 0.5 M NH₄SCN w metanolu; (80% metanolu) – tu nazywany roztworem "B". Frakcja ta stanowi materiał wyjściowy dla oznaczeń ziem rzadkich (RE)
- Am 15. Wyplukujemy Am i Cm z kolumny za pomocą 50 ml roztworu 1.5 M HCl w metanolu (86% metanolu) (roztwór "C") – przesącz odbieramy do zlewki 50 ml i odparowujemy.
- Am 16. Przeprowadzamy do 1M HCl (20ml), płuczemy i robimy źródło metodą współstrącania z NdF₃.
- Am 17. Pomiar na spektrometrze promieniowania alfa.

Uwaga:

W pracy [Mietelski i Kozik, 1996], gdzie wykonano pomiar Am tylko na spektrometrze gamma (z wykorzystaniem jako znaczników izotopów europu, których aktywność wyznaczono w całej oryginalnej próbce) procedurę uproszczono wykonując jedynie pkt. Am 1-7 oraz Am 16 (w tym przypadku uzyskane źródło nie było źródłem ciekim w sensie stosowanym w spektrometrii alfa).

VII. Ziemie rzadkie (RE) – głównie Eu, Gd i Sm

Materiał wyjściowy: frakcja wyplukana z kolumny roztworem "B" w procedurze oznaczania ameryku i kiuru (pkt. Am 14).

RE 1. przelewamy do naczynia do wirówki. Dodajemy parę kropli roztworu FeCl₃ i ok. 10-15 ml amoniaku, tak by pH=9. Wstrząsamy, odwirowujemy 10 min, 3000 obr/min (< 38 G).

RE 2. Dekantujemy, osad traktujemy kolejno stężonym HNO₃ i HCl (po 5 ml), wyplukujemy naczynie.

RE 3. Odparowujemy do kilku kropel w zlewce 50 ml. Dodajemy do 10 wodę. Przeprowadzamy do moczówki kolejno płuczając wodą zlewkę (po 5 ml)

RE 4. W moczówce dodajemy 2.5 ml. 40 % HF, nie dodajemy neodymu!. Odczekujemy 2 h, filtrujemy i dalej jak w etapach przygotowania źródła Z3-Z8.

Procedury dodatkowe dla kontroli jakości

Wszystkie naczynia szklane myte są w parach wrzącego kwasu azotowego (min. 1 h), następnie płukane wodą destylowaną.

Naczynia plastikowe traktowane są jako jednorazowe (pipetki Pasteura, końcówki pipet automatycznych, naczynia 120 i 150 ml) lub myte są na zimno kwasem azotowym (zbiorniki cieczy i kolumny chromatograficzne).

Od roku 2001 na każde 10 próbek analizowana jest jedna ślepa próbka i materiał referencyjny (tab. A-1)

Tabela A-1.

Przykładowe wyniki zawartości oznaczanych izotopów w materiałach referencyjnych.

Nazwa materiału	Izotop	Pomiar [Bq/kg s.m.]	Wartość certyfikowana [Bq/kg s.m.]	Referencja
IAEA –A12 (Kość zwierzęca)	⁹⁰ Sr	65±14	54.8 (46.3÷59.2)	Mietelski i inni, 2001a
IAEA Soil 375 (Gleba z Ukrainy)	⁹⁰ Sr	117±5	108 (101÷114)	Mietelski i inni, 2001a
	⁹⁰ Sr	104±10	108 (101÷114)	Mietelski i inni, 2003 c
	¹³⁷ Cs	5559±66	5280 (5200÷5360)	Mietelski i inni, 2003 c
	⁴⁰ K	423±28	424 (417÷432)	Mietelski i inni, 2003 c
	²³⁹⁺²⁴⁰ Pu	0.267±0.025	0.30 (0.26÷0.34)	Mietelski i inni, 2003 c
		0.259±0.026	0.30 (0.26÷0.34)	Mietelski i inni, 2003 c
	²³⁸ Pu	0.076±0.010	0.071 (0.056÷0.085)	Mietelski i inni, 2003 c
		0.052±0.009	0.071 (0.056÷0.085)	Mietelski i inni, 2003 c
	²⁴¹ Am	0.126±0.033	0.13 (0.11÷0.15)	Mietelski i inni, 2003 c
IAEA 300	²³⁹⁺²⁴⁰ Pu	3.419±0.186	3.55 (3.44÷3.65)	Mietelski i inni, 2002
(Osad denny z Bałtyku) [IAEA-1998]	²³⁹⁺²⁴⁰ Pu	3.622±0.214	3.55 (3.44÷3.65)	Mietelski i inni, 2002
	²³⁸ Pu	0.171±15	0.150*	Mietelski i inni, 2002
	²³⁸ Pu	0.177±20	0.150*	Mietelski i inni, 2002
IAEA Soil 6	²³⁹⁺²⁴⁰ Pu	1.01±0.14	1.040 (0.962÷1.110)	Mietelski i Waś, 1995
Gleba z Austrii	²³⁹⁺²⁴⁰ Pu	1.029±0.075	1.040 (0.962÷1.110)	Mietelski i inni, 2002
		stężenie [ppm]	certyfikowane [ppm]	
IAEA-375	stab. Sr	97.4±0.6	101(94÷108)	Mietelski i inni, 2001a

* - wartość nie certyfikowana (“*Information value*”)

Słowniczek skrótów i symboli używanych w pracy

Oznaczenia

- ζ -stosunek aktywności ^{238}Pu do $^{239+240}\text{Pu}$ w opadzie globalnym.
 ξ -stosunek aktywności ^{238}Pu do $^{239+240}\text{Pu}$ w opadzie czarnobylskim
 σ -odchylenie standardowe
 Θ -efektywność rejestracji danego rodzaju promieniowania (określanego w indeksie)
 A_{238} -zawartość (inaczej: stężenie aktywności) ^{238}Pu , w [Bq/kg]
 A_{239} -zawartość (inaczej: stężenie aktywności) $^{239+240}\text{Pu}$, w [Bq/kg]
 A_{241} -zawartość (inaczej: stężenie aktywności) ^{241}Pu , w [Bq/kg]
 A_{ch} -zawartość (inaczej: stężenie aktywności) $^{239+240}\text{Pu}$ pochodzącego z Czarnobyla, wyrażone w [Bq/kg]. Sam indeks „ch” przy oznacza składową czarnobylską danej zawartości
 A_p -aktywność próbki
 A_w -aktywność wzorca (lub znacznika wewnętrznego)
B -liczba zliczeń w tle
BGO-scyntylator bizmut-german-tlen
c-prędkość światła
E, S, D, P-nazwy detektorów promieniowania gamma wykorzystywanych w pomiarach
F-procentowy udział aktywności danego radionuklidu pochodzącego z Czarnobyla. Bez dodatkowych symboli (indeksów itp.) odnosi się do $^{239+240}\text{Pu}$.
m -masa
m.p.-masa spopielona
MDA-granica oznaczalności dla stężenia aktywności (zawartości)
N-liczba zliczeń, próbek itp..
p-poziom istotności
ppb-part per billion – stężenie 10^{-9} g/g
ppm-part per million – stężenie 10^{-6} g/g
R -współczynnik korelacji Pearsona
r -wartość stosunku aktywności
s.m.-sucha masa
t -czas pomiaru
u-prędkość cząstki
Y-odzysk (wydajność radiochemiczna)

Nazwy instytucji, organizacji itp:

- CLOR-Centralne Laboratorium Ochrony Radiologicznej
IAEA-Międzynarodowa Agencja Energii Atomowej (MAEA).
ICRP-Międzynarodowa Komisja Ochrony przed Promieniowaniem
IFJ -Instytut Fizyki Jądrowej im. Henryka Niewodniczańskiego w Krakowie
IO PAN-Instytut Oceanologii Polskiej Akademii Nauk
LBSRŚ-Laboratorium Badań Skażeń Radioaktywnych Środowiska IFJ
PAA-Państwowa Agencja Atomistyki
UG-Uniwersytet Gdański
UMCS-Uniwersytet Marii Curie-Skłodowskiej
UNSCEAR-United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation